

Rec'd JPTO

02 FEB 2005

10/522947

PCT/JP03/10783

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

26.08.03

REC'D 10 OCT 2003

WIPO

PCT

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日                      2 0 0 3 年    8 月 1 1 日  
Date of Application:

出 願 番 号                      特 願 2 0 0 3 - 2 9 1 1 9 1  
Application Number:  
[ST. 10/C]:                      [ J P 2 0 0 3 - 2 9 1 1 9 1 ]

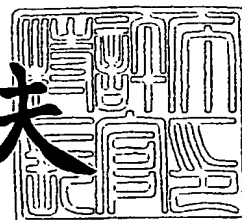
出      願      人                      キヤノン株式会社  
Applicant(s):

**PRIORITY DOCUMENT**  
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH  
RULE 17.1(a) OR (b)

2 0 0 3 年    9 月 2 6 日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

今 井 康 夫



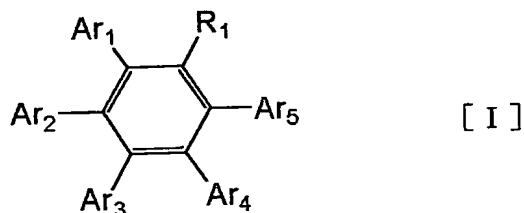
【書類名】 特許願  
【整理番号】 256230  
【提出日】 平成15年 8月11日  
【あて先】 特許庁長官殿  
【国際特許分類】 H05B 33/00  
【発明者】  
    【住所又は居所】 東京都大田区下丸子3丁目30番2号 キヤノン株式会社内  
    【氏名】 鈴木 幸一  
【発明者】  
    【住所又は居所】 東京都大田区下丸子3丁目30番2号 キヤノン株式会社内  
    【氏名】 齊藤 章人  
【発明者】  
    【住所又は居所】 東京都大田区下丸子3丁目30番2号 キヤノン株式会社内  
    【氏名】 山田 直樹  
【発明者】  
    【住所又は居所】 東京都大田区下丸子3丁目30番2号 キヤノン株式会社内  
    【氏名】 川合 達人  
【発明者】  
    【住所又は居所】 東京都大田区下丸子3丁目30番2号 キヤノン株式会社内  
    【氏名】 笠原 麻紀  
【発明者】  
    【住所又は居所】 東京都大田区下丸子3丁目30番2号 キヤノン株式会社内  
    【氏名】 妹尾 章弘  
【特許出願人】  
    【識別番号】 000001007  
    【氏名又は名称】 キヤノン株式会社  
【代理人】  
    【識別番号】 100096828  
    【弁理士】  
    【氏名又は名称】 渡辺 敬介  
    【電話番号】 03-3501-2138  
【選任した代理人】  
    【識別番号】 100110870  
    【弁理士】  
    【氏名又は名称】 山口 芳広  
    【電話番号】 03-3501-2138  
【先の出願に基づく優先権主張】  
    【出願番号】 特願2002-246600  
    【出願日】 平成14年 8月27日  
【手数料の表示】  
    【予納台帳番号】 004938  
    【納付金額】 21,000円  
【提出物件の目録】  
    【物件名】 特許請求の範囲 1  
    【物件名】 明細書 1  
    【物件名】 図面 1  
    【物件名】 要約書 1  
    【包括委任状番号】 0101029

## 【書類名】 特許請求の範囲

## 【請求項 1】

下記一般式 [I] で示されることを特徴とする縮合多環化合物。

## 【化 1】

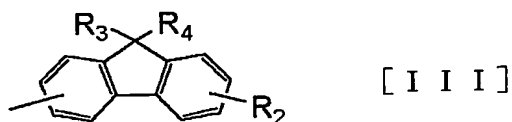


(式中、 $R_1$ は、水素原子、置換あるいは無置換のアルキル基、置換あるいは無置換のアラルキル基、置換あるいは無置換のアリール基、置換あるいは無置換の複素環基、置換アミノ基、シアノ基またはハロゲン原子を表わす。 $A_{r1} \sim A_{r5}$ は、置換あるいは無置換の縮合多環芳香族基または置換あるいは無置換の縮合多環複素環基を表わし、同じであっても異なってもよい。)

## 【請求項 2】

$A_{r1} \sim A_{r5}$ のうち少なくとも一つが、下記一般式 [III] で示される縮合多環芳香族基であることを特徴とする請求項 1 に記載の縮合多環化合物。

## 【化 2】

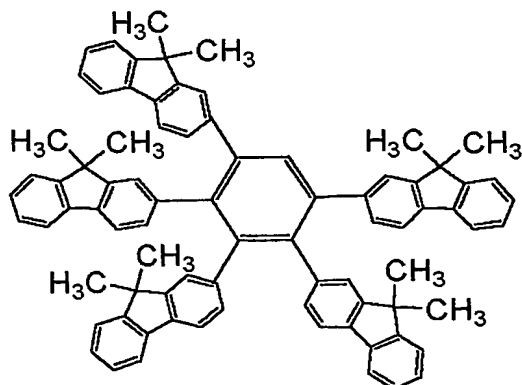


(式中、 $R_2$ は、水素原子、置換あるいは無置換のアルキル基、置換あるいは無置換のアラルキル基、置換あるいは無置換のアリール基、置換あるいは無置換の複素環基、置換アミノ基、シアノ基またはハロゲン原子を表わす。 $R_3$ および $R_4$ は、水素原子、置換あるいは無置換のアルキル基、置換あるいは無置換のアラルキル基、置換あるいは無置換のアリール基または置換あるいは無置換の複素環基を表わし、同じであっても異なってもよい。)

## 【請求項 3】

下記構造式で示されることを特徴とする請求項 2 に記載の縮合多環化合物。

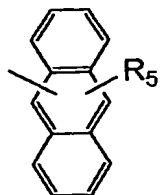
## 【化 3】



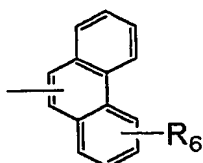
## 【請求項 4】

$A_{r1} \sim A_{r5}$ のうち少なくとも一つが、下記一般式 [IV] ~ [VII] のいずれかで示される縮合多環芳香族基であることを特徴とする請求項 1 に記載の縮合多環化合物。

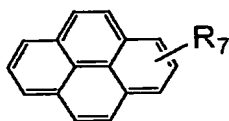
【化 4】



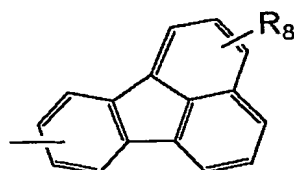
[ I V ]



[ V ]



[ V I ]



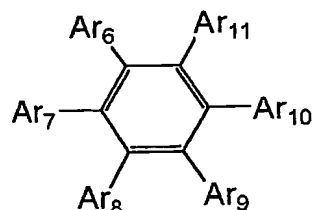
[ V I I ]

(式中、 $R_5 \sim R_8$ は、水素原子、置換あるいは無置換のアルキル基、置換あるいは無置換のアラルキル基、置換あるいは無置換のアリール基、置換あるいは無置換の複素環基、置換アミノ基、シアノ基またはハロゲン原子を表わす。)

## 【請求項 5】

下記一般式 [ I I ] で示されることを特徴とする縮合多環化合物。

【化 5】



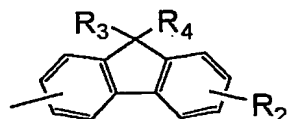
[ I I ]

(式中、 $A r_6 \sim A r_{11}$ は、置換あるいは無置換の縮合多環芳香族基または置換あるいは無置換の縮合多環複素環基を表わし、同じであっても異なってもよい。)

## 【請求項 6】

$A r_6 \sim A r_{11}$ のうち少なくとも一つが、下記一般式 [ I I I ] で示される縮合多環芳香族基であることを特徴とする請求項 5 に記載の縮合多環化合物。

【化 6】



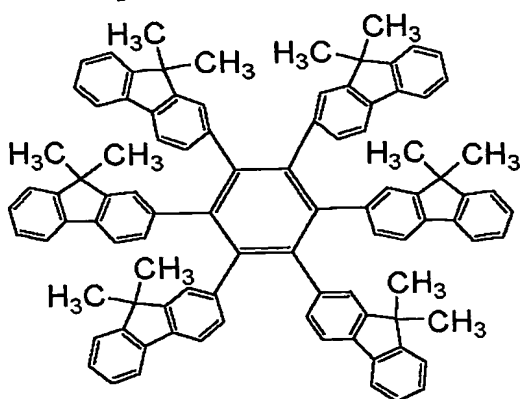
[ I I I ]

(式中、 $R_2$ は、水素原子、置換あるいは無置換のアルキル基、置換あるいは無置換のアラルキル基、置換あるいは無置換のアリール基、置換あるいは無置換の複素環基、置換アミノ基、シアノ基またはハロゲン原子を表わす。 $R_3$ および $R_4$ は、水素原子、置換あるいは無置換のアルキル基、置換あるいは無置換のアラルキル基、置換あるいは無置換のアリール基または置換あるいは無置換の複素環基を表わし、同じであっても異なってもよい。)

【請求項7】

下記構造式で示されることを特徴とする請求項6に記載の縮合多環化合物。

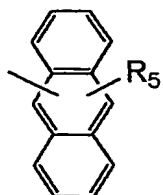
【化7】



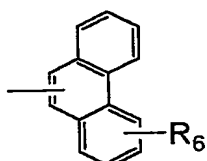
【請求項8】

$Ar_1 \sim Ar_5$ のうち少なくとも一つが、下記一般式【IV】～【VII】のいずれかで示される縮合多環芳香族基であることを特徴とする請求項5に記載の縮合多環化合物。

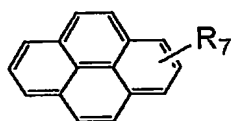
【化8】



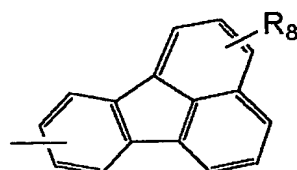
[IV]



[V]



[VI]



[VII]

(式中、 $R_5 \sim R_8$ は、水素原子、置換あるいは無置換のアルキル基、置換あるいは無置換のアラルキル基、置換あるいは無置換のアリール基、置換あるいは無置換の複素環基、置換アミノ基、シアノ基またはハロゲン原子を表わす。)

## 【請求項9】

陽極及び陰極からなる一対の電極と、該一対の電極間に挟持された一または複数の有機化合物を含む層を少なくとも有する有機発光素子において、前記有機化合物を含む層の少なくとも一層が請求項1～4に記載のいずれかの縮合多環化合物の少なくとも一種を含有することを特徴とする有機発光素子。

## 【請求項10】

陽極及び陰極からなる一対の電極と、該一対の電極間に挟持された一または複数の有機化合物を含む層を少なくとも有する有機発光素子において、前記有機化合物を含む層の少なくとも一層が請求項5～8に記載のいずれかの縮合多環化合物の少なくとも一種を含有することを特徴とする有機発光素子。

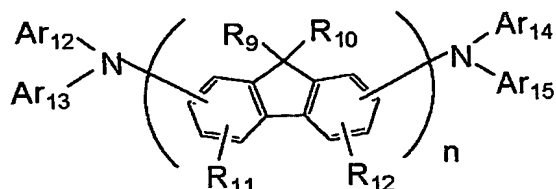
## 【請求項11】

前記有機化合物を含む層のうち少なくとも電子輸送層または発光層が、前記縮合多環化合物の少なくとも一種を含有することを特徴とする請求項9または10に記載の有機発光素子。

## 【請求項12】

前記有機化合物を含む層のうち少なくとも発光層が、前記縮合多環化合物の少なくとも一種と、下記一般式[VIII]で示されるフルオレン化合物を含有することを特徴とする請求項9または10に記載の有機発光素子。

【化 9】



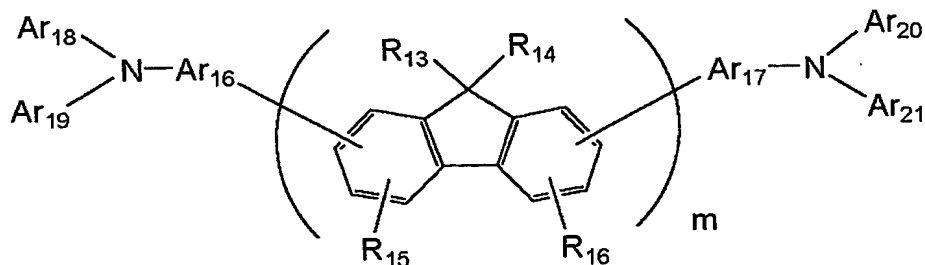
[V I I I]

(式中、 $R_9$ および $R_{10}$ は、水素原子、置換あるいは無置換のアルキル基、置換あるいは無置換のアラルキル基、置換あるいは無置換のアリール基または置換あるいは無置換の複素環基を表わし、異なるフルオレン基に結合する $R_9$ 同士、 $R_{10}$ 同士は、同じであっても異なっているてもよく、同じフルオレン基に結合する $R_9$ および $R_{10}$ は、同じであっても異なっているてもよい。 $R_{11}$ および $R_{12}$ は、水素原子、置換あるいは無置換のアルキル基、置換あるいは無置換のアラルキル基、置換あるいは無置換のアリール基、置換あるいは無置換の複素環基、シアノ基またはハロゲン原子を表わす。異なるフルオレン基に結合する $R_{11}$ 同士、 $R_{12}$ 同士は、同じであっても異なっているてもよく、同じフルオレン基に結合する $R_{11}$ および $R_{12}$ は、同じであっても異なっているてもよい。 $A r_{12}$ 、 $A r_{13}$ 、 $A r_{14}$ および $A r_{15}$ は、置換あるいは無置換の芳香族基、置換あるいは無置換の複素環基、置換あるいは無置換の縮合多環芳香族基または置換あるいは無置換の縮合多環複素環基を表わし、同じであっても異なっているてもよい。 $A r_{12}$ および $A r_{13}$ 、 $A r_{14}$ および $A r_{15}$ は、互いに結合し環を形成してもよい。 $n$ は、1乃至10の整数を表す。)

## 【請求項 13】

前記有機化合物を含む層のうち少なくとも発光層が、前記縮合多環化合物の少なくとも一種と、下記一般式 [IX] で示されるフルオレン化合物を含有することを特徴とする請求項 9 または 10 に記載の有機発光素子。

【化 10】



[I X]

(式中、 $R_{13}$ および $R_{14}$ は、水素原子、置換あるいは無置換のアルキル基、置換あるいは無置換のアラルキル基、置換あるいは無置換のアリール基または置換あるいは無置換の複素環基を表わし、異なるフルオレン基に結合する $R_{13}$ 同士、 $R_{14}$ 同士は、同じであっても異なっているてもよく、同じフルオレン基に結合する $R_{13}$ および $R_{14}$ は、同じであっても異なっているてもよい。 $R_{15}$ および $R_{16}$ は、水素原子、置換あるいは無置換のアルキル基、置換あるいは無置換のアラルキル基、置換あるいは無置換のアリール基、置換あるいは無置換の複素環基、シアノ基またはハロゲン原子を表わす。異なるフルオレン基に結合する $R_{15}$ 同士、 $R_{16}$ 同士は、同じであっても異なっているてもよく、同じフルオレン基に結合する $R_{15}$ および $R_{16}$ は、同じであっても異なっているてもよい。 $A r_{16}$ および $A r_{17}$ は、2価の置換あるいは無置換の芳香族基または置換あるいは無置換の複素環基を表し、同じであっても異なっているてもよい。 $A r_{18}$ 、 $A r_{19}$ 、 $A r_{20}$ および $A r_{21}$ は、置換あるいは無置換の芳香族基、置換あるいは無置換の複素環基、置換あるいは無置換の縮合多環芳香族基または置換あるいは無置換の縮合多環複素環基を表わし、同じであっても異なっているてもよい。 $A r_{18}$ および $A r_{19}$ 、 $A r_{20}$ および $A r_{21}$ は、互いに結合し環を形成してもよい。 $m$ は、1乃至10の整数を表す。)

## 【書類名】明細書

【発明の名称】縮合多環化合物及びそれを用いた有機発光素子

## 【技術分野】

## 【0001】

本発明は、新規な有機化合物およびそれを用いた有機発光素子に関する。

## 【背景技術】

## 【0002】

有機発光素子は、陽極と陰極間に蛍光性有機化合物または燐光性有機化合物を含む薄膜を挟持させて、各電極から電子およびホール（正孔）を注入することにより、蛍光性化合物または燐光性化合物の励起子を生成させ、この励起子が基底状態にもどる際に放射される光を利用する素子である。

## 【0003】

1987年コダック社の研究（非特許文献1）では、陽極にITO、陰極にマグネシウム銀の合金をそれぞれ用い、電子輸送材料および発光材料としてアルミニウムキノリノール錯体を用い、ホール輸送材料にトリフェニルアミン誘導体を用いた機能分離型2層構成の素子で、10V程度の印加電圧において1000cd/m<sup>2</sup>程度の発光が報告されている。関連の特許としては、特許文献1～3等が挙げられる。

## 【0004】

また、蛍光性有機化合物の種類を変えることにより、紫外から赤外までの発光が可能であり、最近では様々な化合物の研究が活発に行われている。例えば、特許文献4～11等に記載されている。

## 【0005】

近年、燐光性化合物を発光材料として用い、三重項状態のエネルギーをEL発光に用いる検討が多くなされている。プリンストン大学のグループにより、イリジウム錯体を発光材料として用いた有機発光素子が、高い発光効率を示すことが報告されている（非特許文献2）。

## 【0006】

さらに、上記のような低分子材料を用いた有機発光素子の他にも、共役系高分子を用いた有機発光素子が、ケンブリッジ大学のグループ（非特許文献3）により報告されている。この報告ではポリフェニレンビニレン（PPV）を塗工系で成膜することにより、単層で発光を確認している。

## 【0007】

共役系高分子を用いた有機発光素子の関連特許としては、特許文献12～16等が挙げられる。

## 【0008】

このように有機発光素子における最近の進歩は著しく、その特徴は低印加電圧で高輝度、発光波長の多様性、高速応答性、薄型、軽量の発光デバイス化が可能であることから、広汎な用途への可能性を示唆している。

## 【0009】

しかしながら、現状では更なる高輝度の光出力あるいは高変換効率が必要である。また、長時間の使用による経時変化や酸素を含む雰囲気気体や湿気などによる劣化等の耐久性の面で未だ多くの問題がある。さらにはフルカラーディスプレイ等への応用を考えた場合の色純度の良い青、緑、赤の発光が必要となるが、これらの問題に関してもまだ十分でない。

## 【0010】

電子輸送層や発光層などに用いる蛍光性有機化合物として、芳香族化合物や縮合多環芳香族化合物が数多く研究されている。例えば、特許文献17～25などが挙げられるが、発光輝度や耐久性が十分に満足できるものは得られていない。

## 【0011】

【特許文献1】米国特許4,539,507号明細書



- 【特許文献2】米国特許4,720,432号明細書  
 【特許文献3】米国特許4,885,211号明細書  
 【特許文献4】米国特許5,151,629号明細書  
 【特許文献5】米国特許5,409,783号明細書  
 【特許文献6】米国特許5,382,477号明細書  
 【特許文献7】特開平2-247278号公報  
 【特許文献8】特開平3-255190号公報  
 【特許文献9】特開平5-202356号公報  
 【特許文献10】特開平9-202878号公報  
 【特許文献11】特開平9-227576号公報  
 【特許文献12】米国特許5,247,190号明細書  
 【特許文献13】米国特許5,514,878号明細書  
 【特許文献14】米国特許5,672,678号明細書  
 【特許文献15】特開平4-145192号公報  
 【特許文献16】特開平5-247460号公報  
 【特許文献17】特開平4-68076号公報  
 【特許文献18】特開平5-32966号公報  
 【特許文献19】特開平6-228552号公報  
 【特許文献20】特開平6-240244号公報  
 【特許文献21】特開平7-109454号公報  
 【特許文献22】特開平8-311442号公報  
 【特許文献23】特開平9-241629号公報  
 【特許文献24】特開2000-26334号公報  
 【特許文献25】特開2000-268964号公報  
 【非特許文献1】Appl. Phys. Lett. 51, 913 (1987)  
 【非特許文献2】Nature, 395, 151 (1998)  
 【非特許文献3】Nature, 347, 539 (1990)

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0012】

本発明の目的は、新規な縮合多環化合物を提供することにある。

【0013】

また本発明の目的は、特定な縮合多環化合物を用い、極めて高効率で高輝度な光出力を有する有機発光素子を提供することにある。

【0014】

また、極めて耐久性のある有機発光素子を提供することにある。

【0015】

さらには製造が容易でかつ比較的安価に作成可能な有機発光素子を提供する事にある。

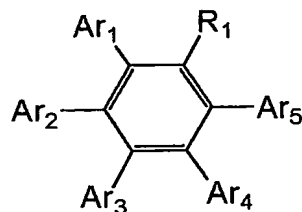
【課題を解決するための手段】

【0016】

即ち、本発明の縮合多環化合物は、下記一般式 [I] または [II] で示されることを特徴とする。

【0017】

【化1】



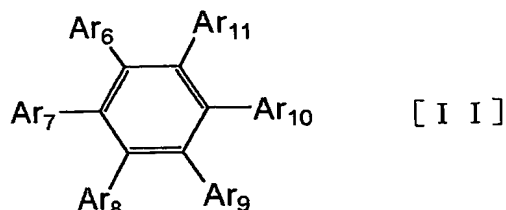
[I]

## 【0018】

(式中、 $R_1$ は、水素原子、置換あるいは無置換のアルキル基、置換あるいは無置換のアラルキル基、置換あるいは無置換のアリール基、置換あるいは無置換の複素環基、置換アミノ基、シアノ基またはハロゲン原子を表わす。 $Ar_1 \sim Ar_5$ は、置換あるいは無置換の縮合多環芳香族基または置換あるいは無置換の縮合多環複素環基を表わし、同じであっても異なっているてもよい。)

## 【0019】

## 【化2】



## 【0020】

(式中、 $Ar_6 \sim Ar_{11}$ は、置換あるいは無置換の縮合多環芳香族基または置換あるいは無置換の縮合多環複素環基を表わし、同じであっても異なっているてもよい。)

## 【0021】

また、本発明の有機発光素子は、陽極及び陰極からなる一対の電極と、該一対の電極間に挟持された一または複数の有機化合物を含む層を少なくとも有する有機発光素子において、前記有機化合物を含む層の少なくとも一層が上記縮合多環化合物の少なくとも一種を含有することを特徴とする。

## 【発明の効果】

## 【0022】

一般式 [I] または一般式 [I I] で示される縮合多環化合物を用いた有機発光素子は、低い印加電圧で高輝度な発光が得られ、耐久性にも優れている。特に本発明の縮合多環化合物を含有する有機層は、電子輸送層として優れ、かつ発光層としても優れている。

## 【0023】

さらに、素子の作成も真空蒸着あるいはキャスト法等を用いて作成可能であり、比較的安価で大面積の素子を容易に作成できる。

## 【発明を実施するための最良の形態】

## 【0024】

以下、本発明を詳細に説明する。

## 【0025】

まず、本発明の縮合多環化合物について説明する。

## 【0026】

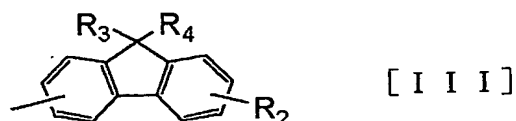
本発明の縮合多環化合物は、上記一般式 [I] または [I I] で示される。

## 【0027】

ここで、 $Ar_1 \sim Ar_5$ のうち少なくとも一つまたは $Ar_6 \sim Ar_{11}$ のうち少なくとも一つが、下記一般式 [I I I] で示される縮合多環芳香族基であることが好ましい。

## 【0028】

## 【化3】



## 【0029】

(式中、 $R_2$ は、水素原子、置換あるいは無置換のアルキル基、置換あるいは無置換のアラルキル基、置換あるいは無置換のアリール基、置換あるいは無置換の複素環基、置換アミノ基、シアノ基またはハロゲン原子を表わす。 $R_3$ および $R_4$ は、水素原子、置換あるいは無置換のアルキル基、置換あるいは無置換のアラルキル基、置換あるいは無置換のアリール基、置換あるいは無置換の複素環基、置換アミノ基、シアノ基またはハロゲン原子を表わす。)

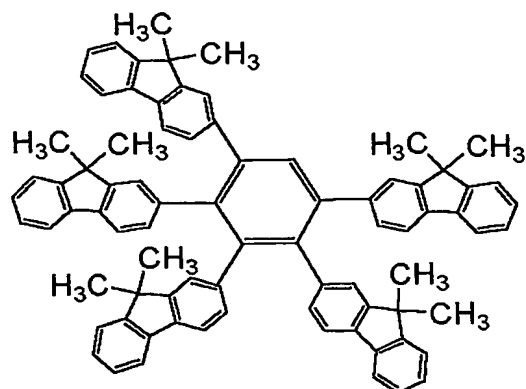
は無置換のアルキル基、置換あるいは無置換のアラルキル基、置換あるいは無置換のアリール基または置換あるいは無置換の複素環基を表わし、同じであっても異なってもよい。)

【0030】

更には、下記いずれかの構造式で示されることがより好ましい。

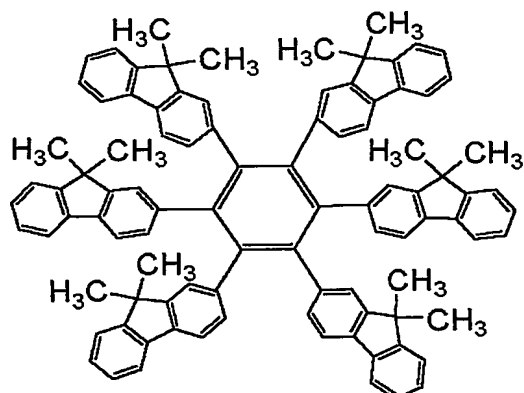
【0031】

【化4】



【0032】

【化5】

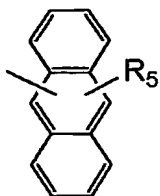


【0033】

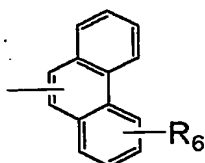
また、Ar<sub>1</sub>~Ar<sub>5</sub>のうち少なくとも一つまたはAr<sub>6</sub>~Ar<sub>11</sub>のうち少なくとも一つが、下記一般式【IV】~【VII】のいずれかで示される縮合多環芳香族基であることが好ましい。

【0034】

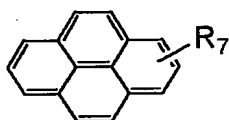
【化 6】



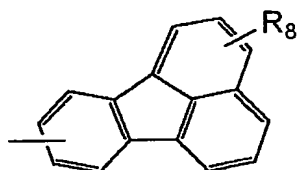
[ I V ]



[ V ]



[ V I ]



[ V I I ]

## 【 0 0 3 5 】

(式中、 $R_5 \sim R_8$ は、水素原子、置換あるいは無置換のアルキル基、置換あるいは無置換のアラルキル基、置換あるいは無置換のアリール基、置換あるいは無置換の複素環基、置換アミノ基、シアノ基またはハロゲン原子を表わす。)

## 【 0 0 3 6 】

上記一般式 [ I ] ~ [ V I I ] における置換基の具体例を以下に示す。

## 【 0 0 3 7 】

アルキル基としては、メチル基、エチル基、*n*-プロピル基、*i*s o-プロピル基、*n*-ブチル基、*t* e r-ブチル基、オクチル基などが挙げられる。

## 【 0 0 3 8 】

アラルキル基としては、ベンジル基、フェネチル基などが挙げられる。

## 【 0 0 3 9 】

アリール基としては、フェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基などが挙げられる。

## 【 0 0 4 0 】

複素環基としては、チエニル基、ピロリル基、ピリジル基、オキサゾリル基、オキサジアゾリル基、チアゾリル基、チアジアゾリル基、ターチエニル基などが挙げられる。

## 【 0 0 4 1 】

置換アミノ基としては、ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、ジベンジルアミノ基、ジフェニルアミノ基、ジトリルアミノ基、ジアニソリルアミノ基などが挙げられる。

## 【 0 0 4 2 】

ハロゲン原子としては、フッ素、塩素、臭素、ヨウ素などが挙げられる。

## 【 0 0 4 3 】

縮合多環芳香族基としては、フルオレニル基、ナフチル基、フルオランテニル基、アンスリル基、フェナンスリル基、ピレニル基、テトラセニル基、ペンタセニル基などが挙げられる。

## 【0044】

縮合多環複素環基としては、キノリル基、ジアザフルオレニル基、アクリジニル基、フェナントロリニル基などが挙げられる。

## 【0045】

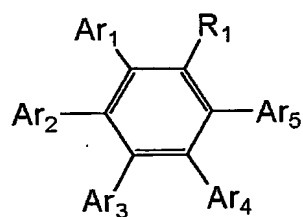
上記置換基が有してもよい置換基としては、メチル基、エチル基、プロピル基などのアルキル基、ベンジル基、フェネチル基などのアラルキル基、フェニル基、ビフェニル基などのアリール基、チエニル基、ピロリル基、ピリジル基などの複素環基、ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、ジベンジルアミノ基、ジフェニルアミノ基、ジトリルアミノ基、ジアニソリルアミノ基などのアミノ基、メトキシル基、エトキシル基、プロポキシル基、フェノキシル基などのアルコキシル基、シアノ基、フッ素、塩素、臭素、ヨウ素などのハロゲン原子などが挙げられる。

## 【0046】

次に、本発明の縮合多環化合物の代表例を以下に挙げるが、本発明はこれらに限定されるものではない。

## 【0047】

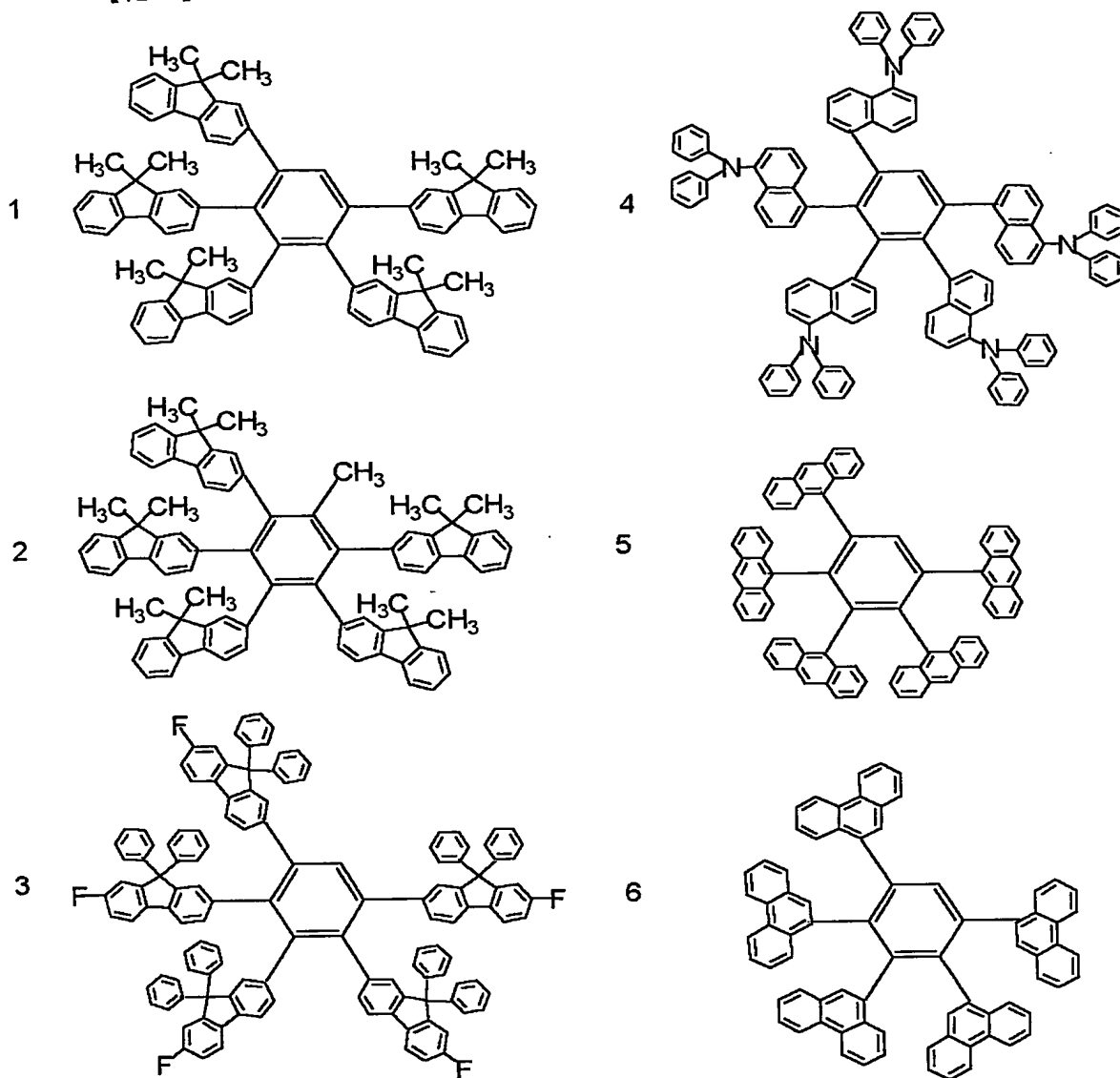
## 【化7】



[I]

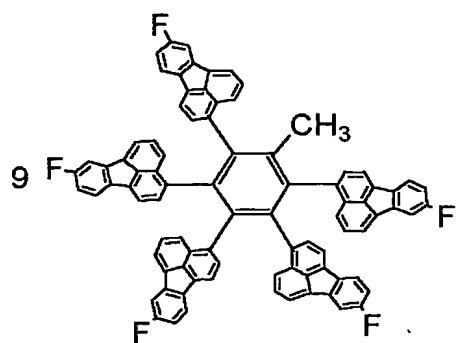
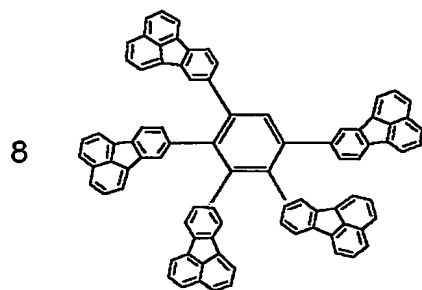
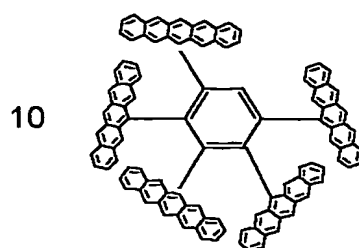
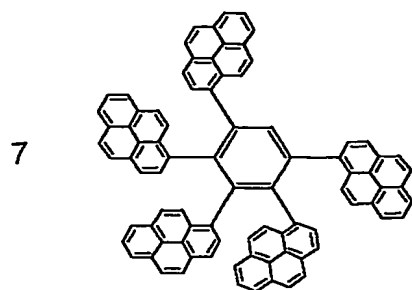
## 【0048】

## 【化 8】



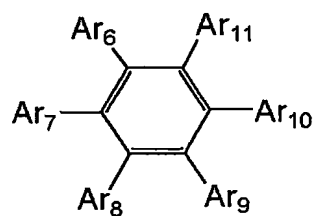
【 0 0 4 9 】

【化 9】



【 0 0 5 0 】

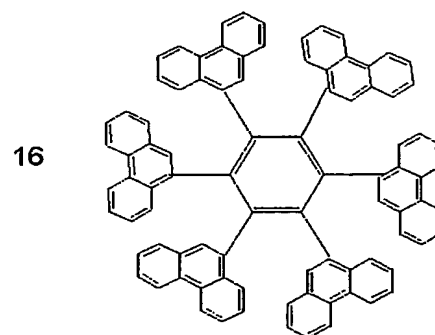
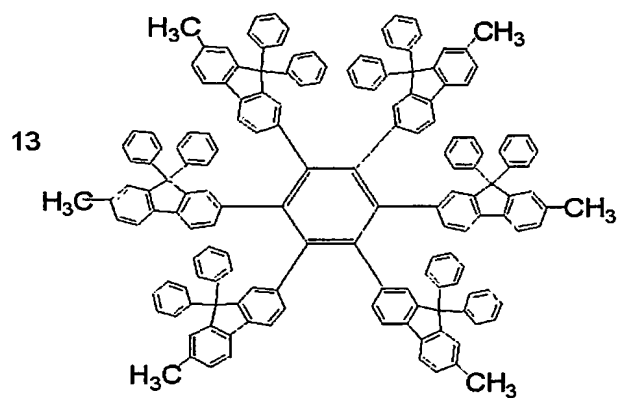
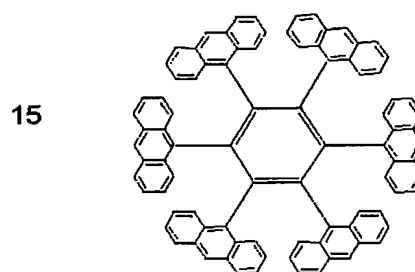
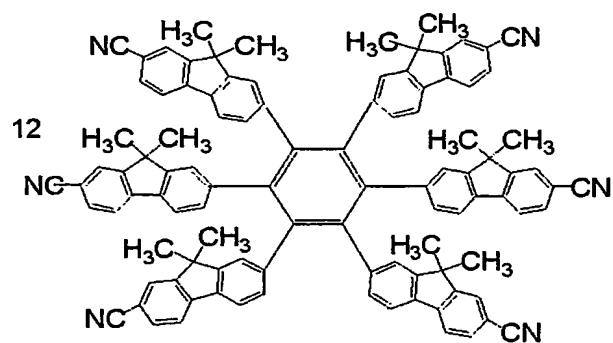
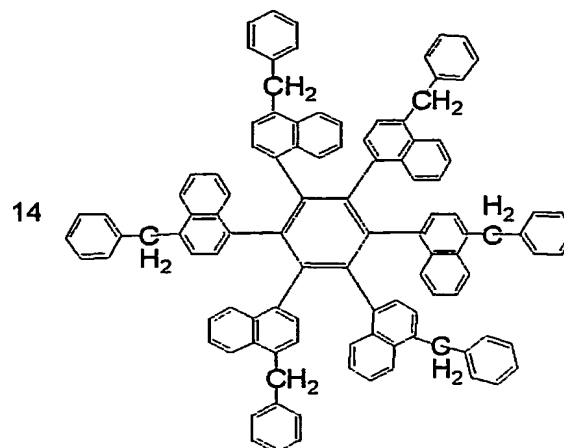
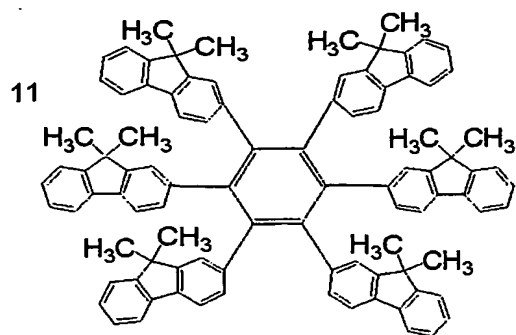
【化 1 0】



[ 1 1 ]

【 0 0 5 1 】

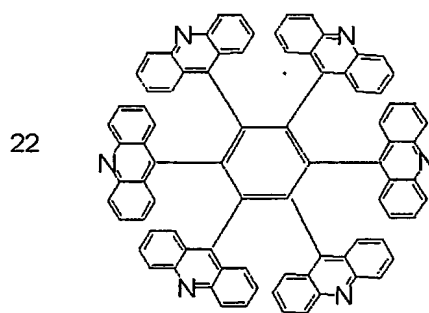
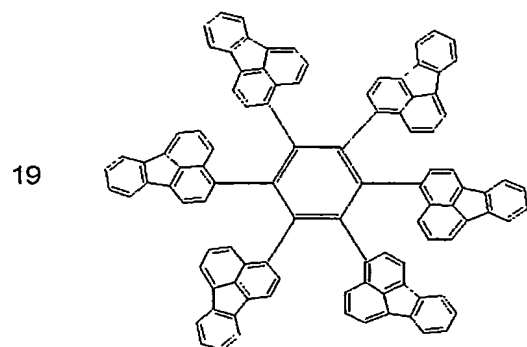
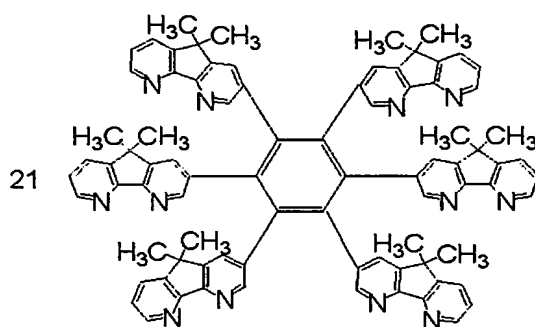
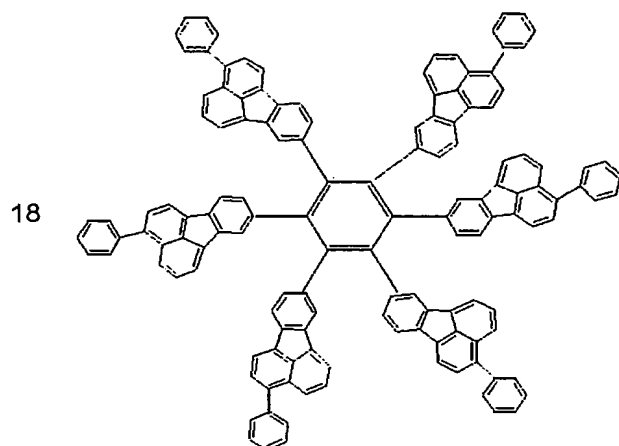
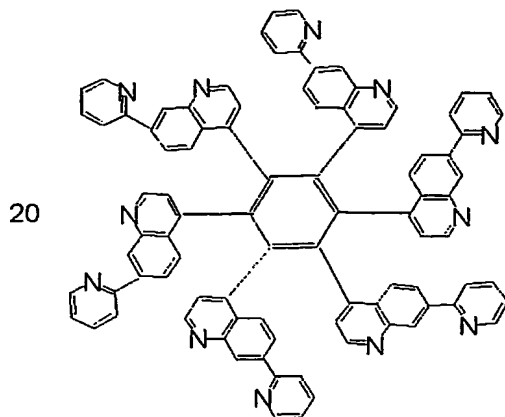
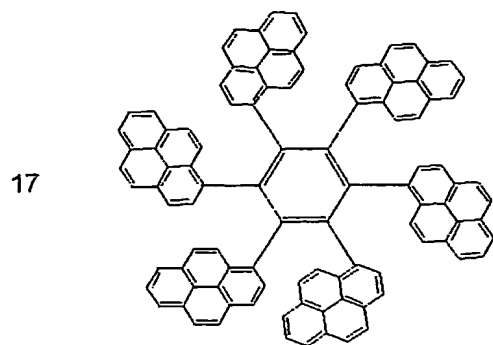
【化 1 1】



【0052】



## 【化12】



## 【0053】

本発明の縮合多環化合物は、一般的に知られている方法で合成でき、例えば、パラジウム触媒を用いたsuzuki coupling法（例えばChem. Rev. 1995, 95, 2457-2483）、ニッケル触媒を用いたYamamoto法（例えばBull. Chem. Soc. Jpn. 51, 2091, 1978）、アリールスズ化合物を用いて合成する方法（例えばJ. Org. Chem., 52, 4296, 1987）などの合成法で得ることができる。

## 【0054】

本発明の縮合多環化合物は、従来の化合物に比べ電子輸送性、発光性および耐久性の優れた化合物であり、有機発光素子の有機化合物を含む層、特に、電子輸送層および発光層として有用であり、また真空蒸着法や溶液塗布法などによって形成した層は結晶化などが起こりにくく経時安定性に優れている。

## 【0055】

次に、本発明の有機発光素子について詳細に説明する。

## 【0056】

本発明の有機発光素子は、陽極及び陰極からなる一对の電極と、該一对の電極間に挟持された一または複数の有機化合物を含む層を少なくとも有する有機発光素子において、前記有機化合物を含む層の少なくとも一層が上記一般式 [I] または一般式 [II] で示される縮合多環化合物の少なくとも一種を含有する。

【0057】

本発明の有機発光素子は、有機化合物を含む層のうち少なくとも電子輸送層または発光層が、前記縮合多環化合物の少なくとも一種を含有することが好ましい。

【0058】

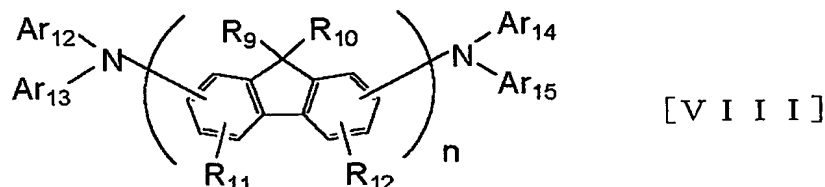
本発明の有機発光素子においては、上記一般式 [I] または一般式 [II] で示される縮合多環化合物を真空蒸着法や溶液塗布法により陽極及び陰極の間に形成する。その有機層の厚みは  $10\ \mu\text{m}$  より薄く、好ましくは  $0.5\ \mu\text{m}$  以下、より好ましくは  $0.01\sim 0.5\ \mu\text{m}$  の厚みに薄膜化することが好ましい。

【0059】

また、本発明の有機発光素子は、前記有機化合物を含む層のうち少なくとも発光層が、前記縮合多環化合物の少なくとも一種と、下記一般式 [VIII] または [IX] で示されるフルオレン化合物を含有することを好ましい態様として含むものである。

【0060】

【化13】

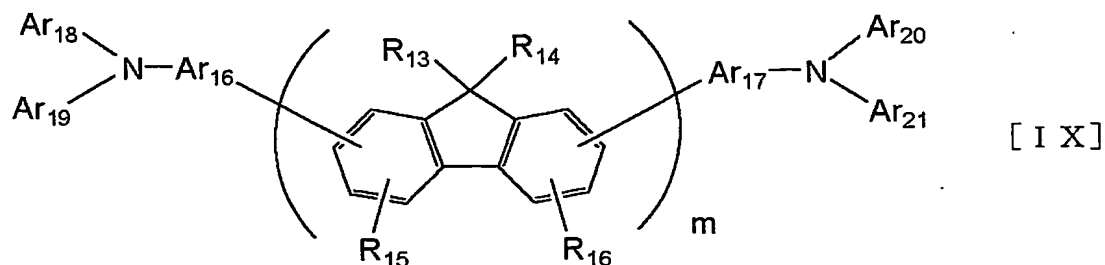


【0061】

(式中、 $R_9$  および  $R_{10}$  は、水素原子、置換あるいは無置換のアルキル基、置換あるいは無置換のアラルキル基、置換あるいは無置換のアリール基または置換あるいは無置換の複素環基を表わし、異なるフルオレン基に結合する  $R_9$  同士、 $R_{10}$  同士は、同じであっても異なってもよく、同じフルオレン基に結合する  $R_9$  および  $R_{10}$  は、同じであっても異なってもよい。 $R_{11}$  および  $R_{12}$  は、水素原子、置換あるいは無置換のアルキル基、置換あるいは無置換のアラルキル基、置換あるいは無置換のアリール基、置換あるいは無置換の複素環基、シアノ基またはハロゲン原子を表わす。異なるフルオレン基に結合する  $R_{11}$  同士、 $R_{12}$  同士は、同じであっても異なってもよく、同じフルオレン基に結合する  $R_{11}$  および  $R_{12}$  は、同じであっても異なってもよい。 $Ar_{12}$ 、 $Ar_{13}$ 、 $Ar_{14}$  および  $Ar_{15}$  は、置換あるいは無置換の芳香族基、置換あるいは無置換の複素環基、置換あるいは無置換の縮合多環芳香族基または置換あるいは無置換の縮合多環複素環基を表わし、同じであっても異なってもよい。 $Ar_{12}$  および  $Ar_{13}$ 、 $Ar_{14}$  および  $Ar_{15}$  は、互いに結合し環を形成してもよい。 $n$  は、1乃至10の整数を表す。)

【0062】

【化14】



【0063】

(式中、 $R_{13}$  および  $R_{14}$  は、水素原子、置換あるいは無置換のアルキル基、置換あるいは無置換のアラルキル基、置換あるいは無置換のアリール基または置換あるいは無置換の複素環基を表わし、異なるフルオレン基に結合する  $R_{13}$  同士、 $R_{14}$  同士は、同じであっても異なってもよく、同じフルオレン基に結合する  $R_{13}$  および  $R_{14}$  は、同じであっても異なってもよい。 $R_{15}$  および  $R_{16}$  は、水素原子、置換あるいは無置換のアルキル基、置換あるいは無置換のアラルキル基、置換あるいは無置換のアリール基、置換あるいは無置換の複素環基、シアノ基またはハロゲン原子を表わす。異なるフルオレン基に結合する  $R_{15}$  同士、 $R_{16}$  同士は、同じであっても異なってもよく、同じフルオレン基に結合する  $R_{15}$  および  $R_{16}$  は、同じであっても異なってもよい。 $Ar_{18}$ 、 $Ar_{19}$ 、 $Ar_{20}$  および  $Ar_{21}$  は、置換あるいは無置換の芳香族基、置換あるいは無置換の複素環基、置換あるいは無置換の縮合多環芳香族基または置換あるいは無置換の縮合多環複素環基を表わし、同じであっても異なってもよい。 $Ar_{18}$  および  $Ar_{19}$ 、 $Ar_{20}$  および  $Ar_{21}$  は、互いに結合し環を形成してもよい。 $m$  は、1乃至10の整数を表す。)

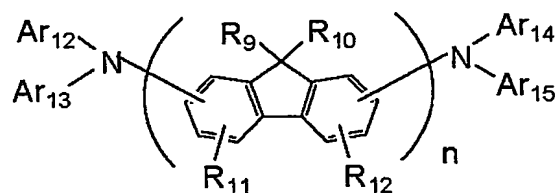
無置換のアラルキル基、置換あるいは無置換のアリール基または置換あるいは無置換の複素環基を表わし、異なるフルオレン基に結合する  $R_{13}$  同士、 $R_{14}$  同士は、同じであっても異なってもよく、同じフルオレン基に結合する  $R_{13}$  および  $R_{14}$  は、同じであっても異なってもよい。 $R_{15}$  および  $R_{16}$  は、水素原子、置換あるいは無置換のアルキル基、置換あるいは無置換のアラルキル基、置換あるいは無置換のアリール基、置換あるいは無置換の複素環基、シアノ基またはハロゲン原子を表わす。異なるフルオレン基に結合する  $R_{15}$  同士、 $R_{16}$  同士は、同じであっても異なってもよく、同じフルオレン基に結合する  $R_{15}$  および  $R_{16}$  は、同じであっても異なってもよい。 $Ar_{16}$  および  $Ar_{17}$  は、2価の置換あるいは無置換の芳香族基または置換あるいは無置換の複素環基を表し、同じであっても異なってもよい。 $Ar_{18}$ 、 $Ar_{19}$ 、 $Ar_{20}$  および  $Ar_{21}$  は、置換あるいは無置換の芳香族基、置換あるいは無置換の複素環基、置換あるいは無置換の縮合多環芳香族基または置換あるいは無置換の縮合多環複素環基を表わし、同じであっても異なってもよい。 $Ar_{18}$  および  $Ar_{19}$ 、 $Ar_{20}$  および  $Ar_{21}$  は、互いに結合し環を形成してもよい。 $m$  は、1乃至10の整数を表す。)

## 【0064】

一般式 [VII I]、[IX] における置換基の具体例は、上記一般式 [I] ~ [VII I] における場合と同様である。以下に、一般式 [VII I] または [IX] で示されるフルオレン化合物の代表例を挙げるが、本発明はこれらに限定されるものではない。

## 【0065】

## 【化15】

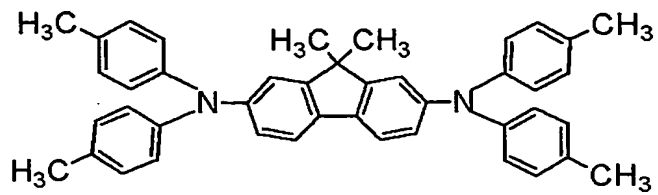


[VII I]

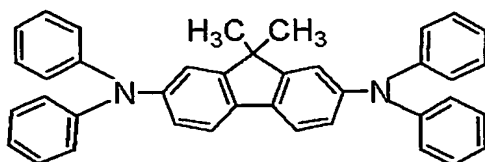
## 【0066】

【化 16】

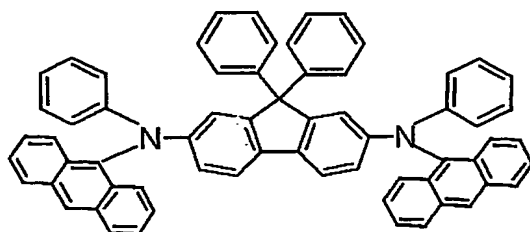
FL-1



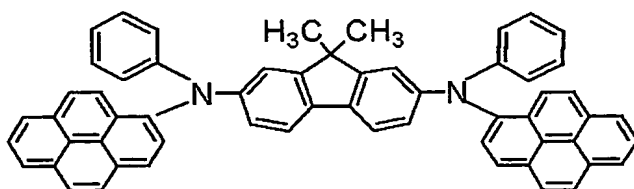
FL-2



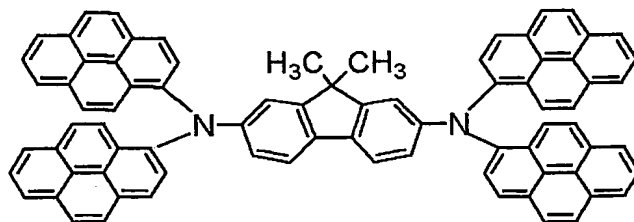
FL-3



FL-4

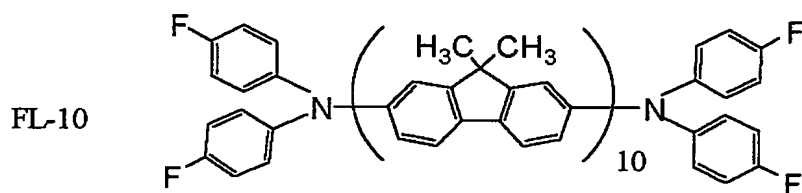
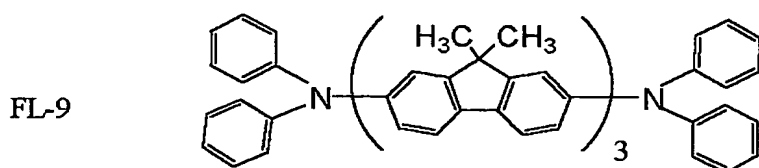
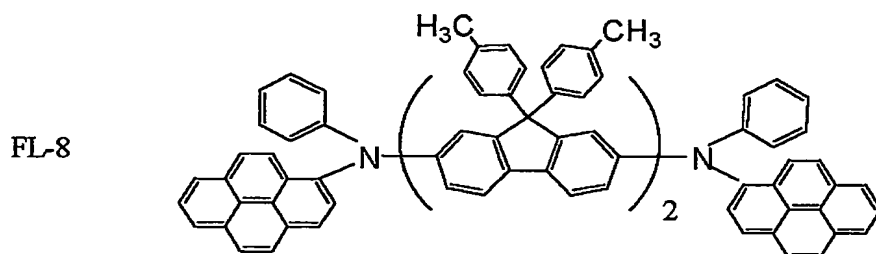
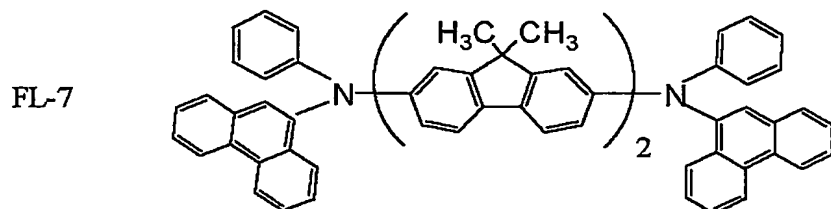
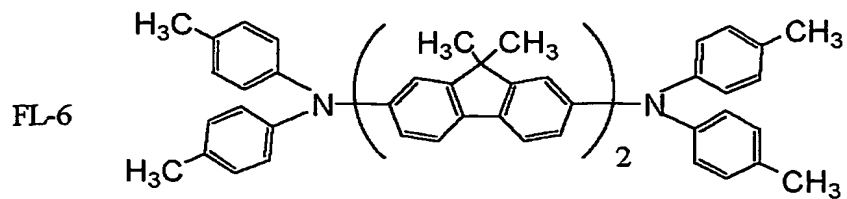


FL-5



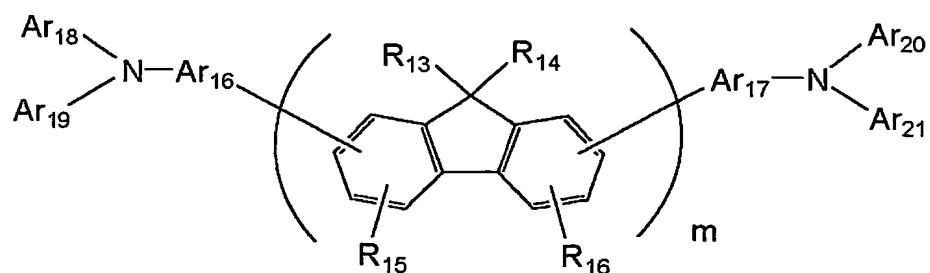
【0067】

【化 17】



【0068】

【化 18】

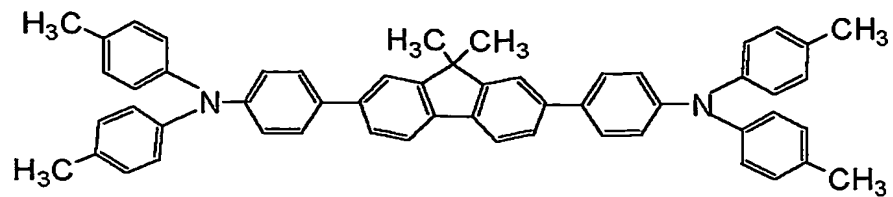


[IX]

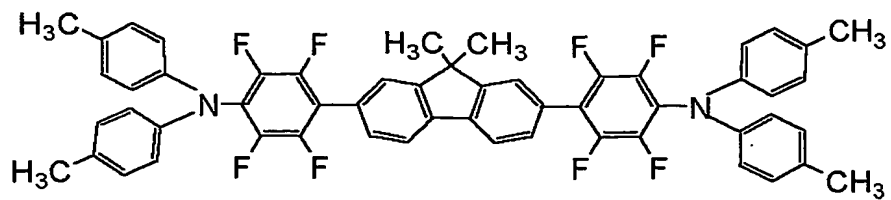
【0069】

【化 19】

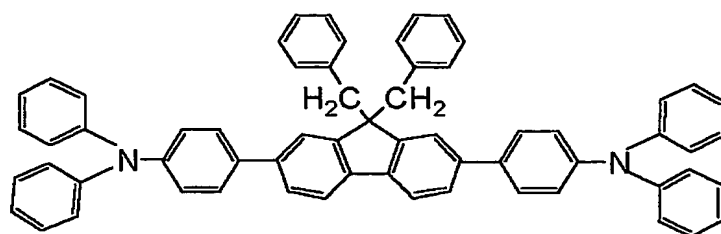
FL-11



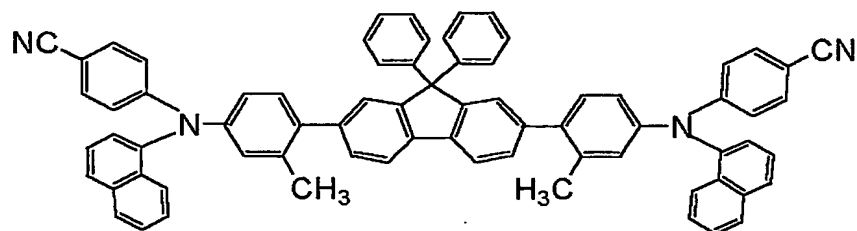
FL-12



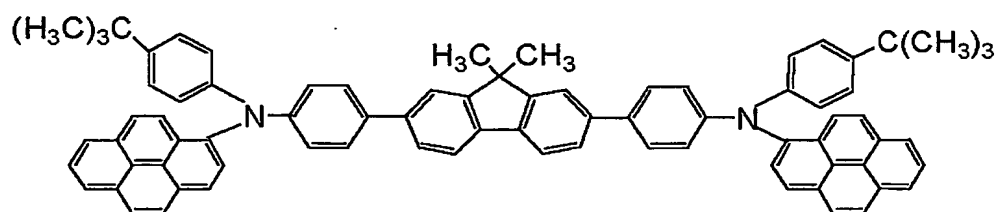
FL-13



FL-14

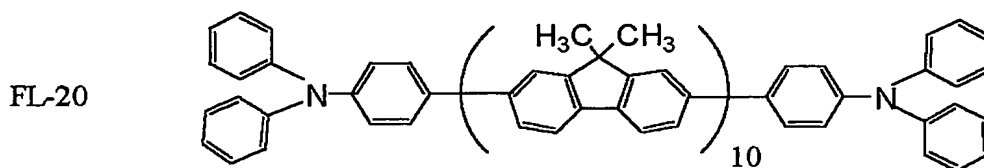
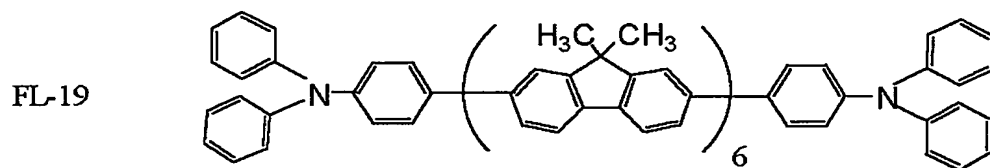
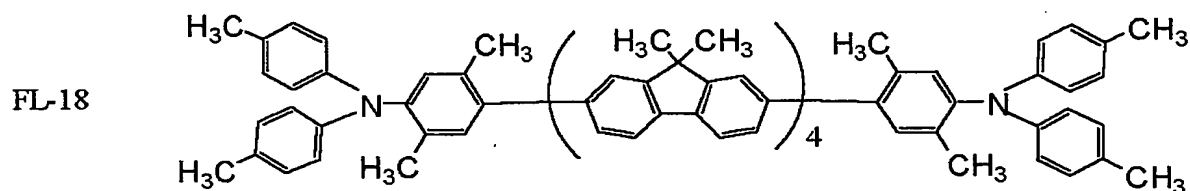
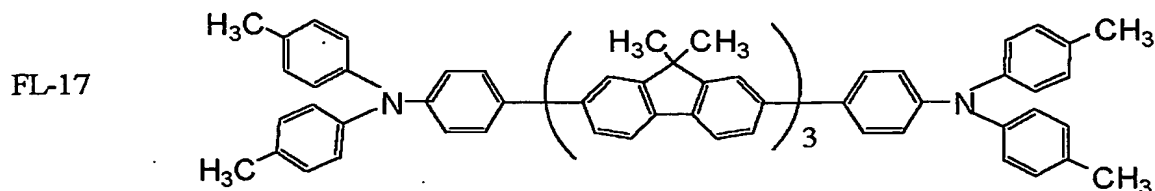
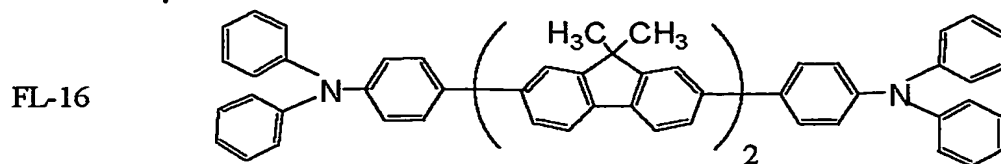


FL-15



【0070】

【化 20】



【0071】

図1～図6に本発明の有機発光素子の好ましい例を示す。

【0072】

図1は、本発明の有機発光素子の一例を示す断面図である。図1は、基板1上に、陽極2、発光層3及び陰極4を順次設けた構成のものである。ここで使用する発光素子は、それ自体でホール輸送能、エレクトロン輸送能及び発光性の性能を単一で有している場合や、それぞれの特性を有する化合物を混ぜて使う場合に有用である。

【0073】

図2は、本発明の有機発光素子における他の例を示す断面図である。図2は、基板1上に、陽極2、ホール輸送層5、電子輸送層6及び陰極4を順次設けた構成のものである。この場合は、発光物質はホール輸送性かあるいは電子輸送性のいずれか、あるいは両方の機能を有している材料をそれぞれの層に用い、発光性の無い単なるホール輸送物質あるいは電子輸送物質と組み合わせて用いる場合に有用である。また、この場合、発光層3は、ホール輸送層5あるいは電子輸送層6のいずれかから成る。

【0074】

図3は、本発明の有機発光素子における他の例を示す断面図である。図3は、基板1上に、陽極2、ホール輸送層5、発光層3、電子輸送層6及び陰極4を順次設けた構成のものである。これは、キャリア輸送と発光の機能を分離したものであり、ホール輸送性、電子輸送性、発光性の各特性を有した化合物と適時組み合わせ用いられ、極めて材料選択の自由度が増すとともに、発光波長を異にする種々の化合物が使用できるため、発光色相の多様化が可能になる。さらに、中央の発光層3に各キャリアあるいは励起子を有効に閉じこめて、発光効率の向上を図ることも可能になる。

【0075】

図4は、本発明の有機発光素子における他の例を示す断面図である。図4は、図3に対して、ホール注入層7を陽極2側に挿入した構成であり、陽極2とホール輸送層5の密着性改善あるいはホールの注入性改善に効果があり、低電圧化に効果的である。

【0076】

図5および図6は、本発明の有機発光素子における他の例を示す断面図である。図5および図6は、図3および図4に対してホールあるいは励起子（エキシトン）を陰極4側に抜けることを阻害する層（ホールブロッキング層8）を、発光層3、電子輸送層6間に挿入した構成である。イオン化ポテンシャルの非常に高い化合物をホールブロッキング層8として用いる事により、発光効率の向上に効果的な構成である。

【0077】

ただし、図1～図6はあくまで、ごく基本的な素子構成であり、本発明の化合物を用いた有機発光素子の構成はこれらに限定されるものではない。例えば、電極と有機層界面に絶縁性層を設ける、接着層あるいは干渉層を設ける、ホール輸送層がイオン化ポテンシャルの異なる2層から構成される、など多様な層構成をとることができる。

【0078】

本発明に用いられる一般式[I]または一般式[II]で示される縮合多環化合物は、従来の化合物に比べ電子輸送性、発光性および耐久性の優れた化合物であり、図1～図6のいずれの形態でも使用することができる。

【0079】

本発明は、電子輸送層または発光層の構成成分として一般式[I]または一般式[II]で示される縮合多環化合物を用いるものであるが、これまで知られているホール輸送性化合物、発光性化合物あるいは電子輸送性化合物などを必要に応じて一緒に使用することもできる。

【0080】

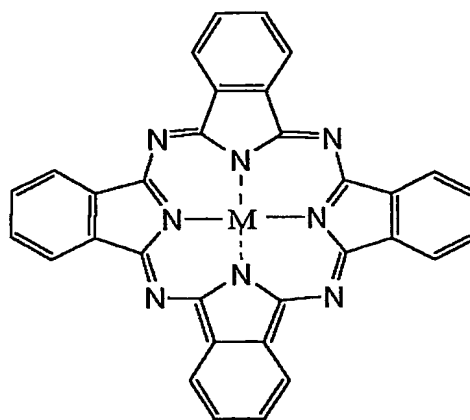
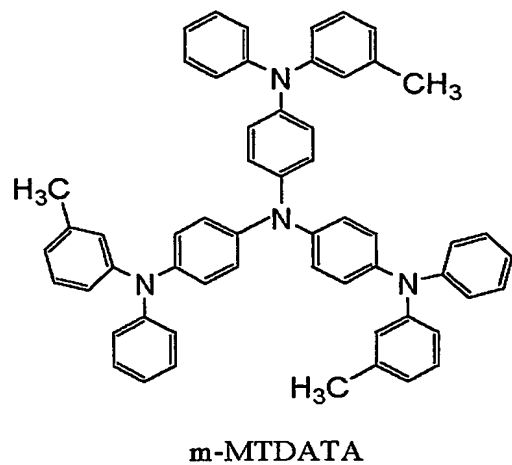
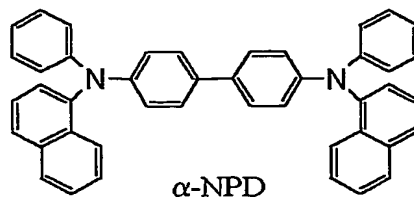
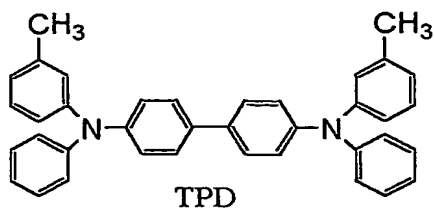
以下にこれらの化合物例を挙げる。

【0081】

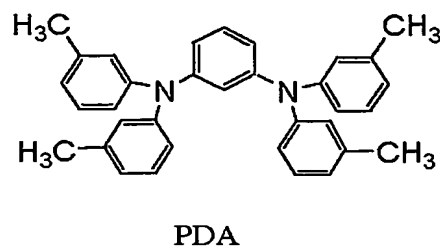
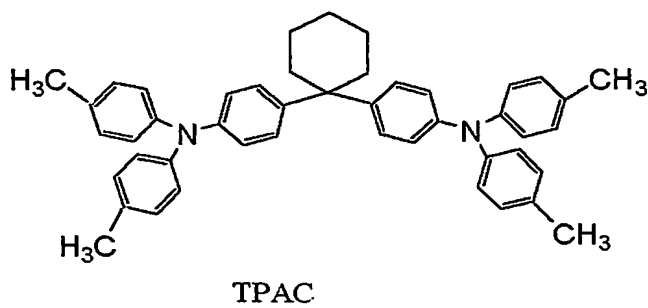
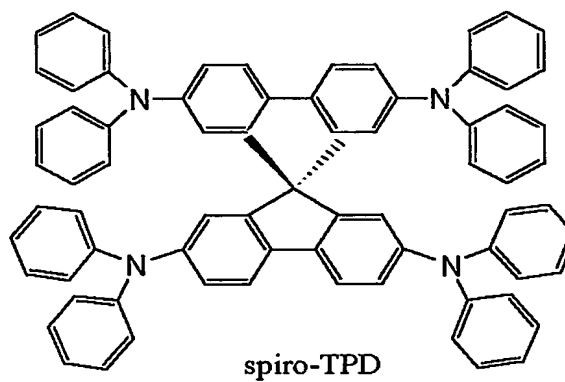
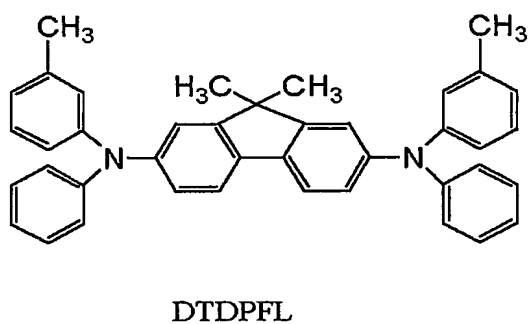


## 【化 21】

ホール輸送性化合物



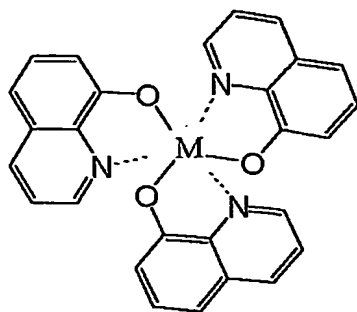
M : Cu, Mg, AlCl, TiO, SiCl<sub>2</sub>, Zn, Sn,  
MnCl, GaCl, etc



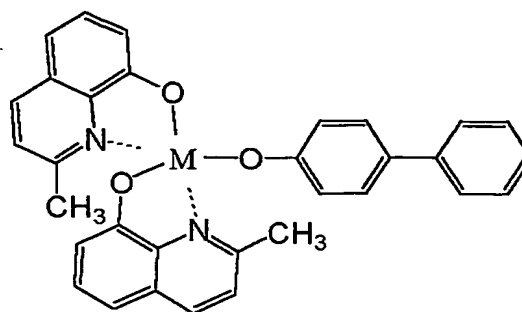
【0082】

## 【化 2 2】

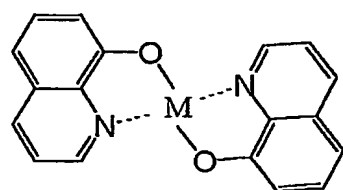
電子輸送性発光材料



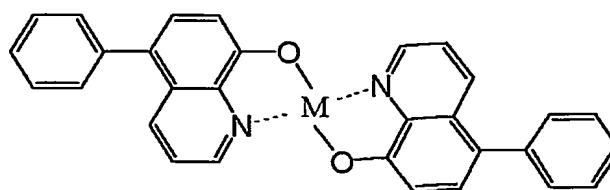
M : Al, Ga



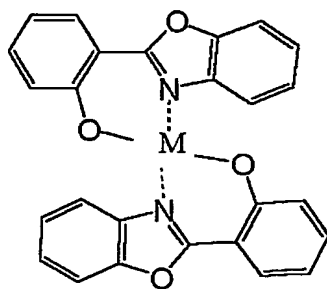
M : Al, Ga



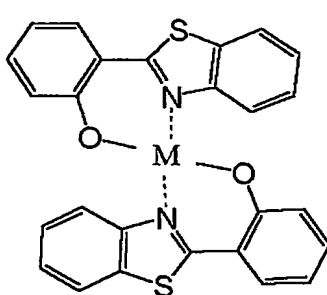
M : Zn, Mg, Be



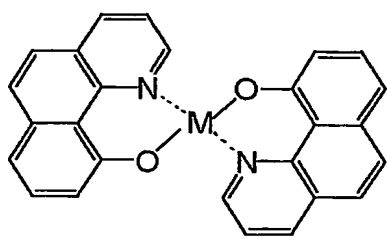
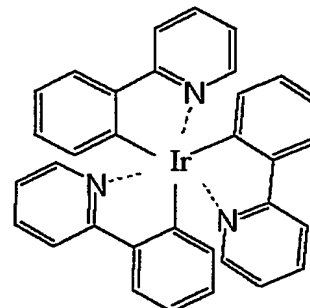
M : Zn, Mg, Be



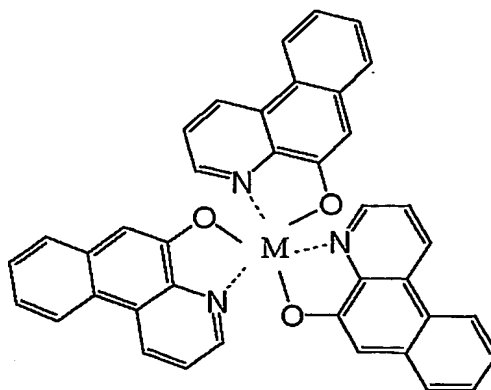
M : Zn, Mg, Be



M : Zn, Mg, Be



M : Zn, Mg, Be

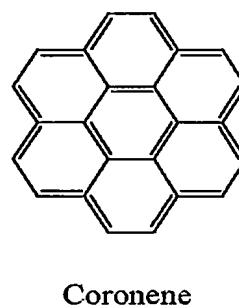
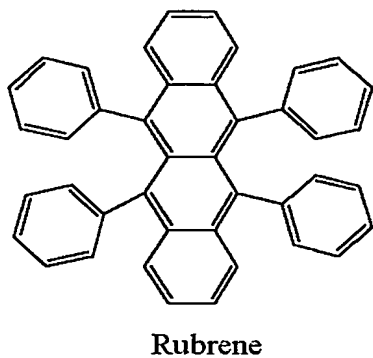
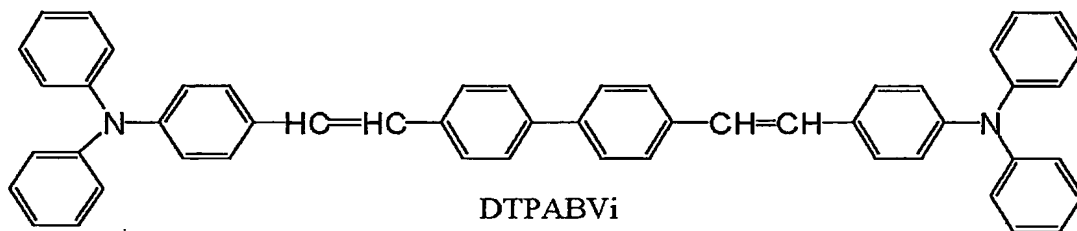
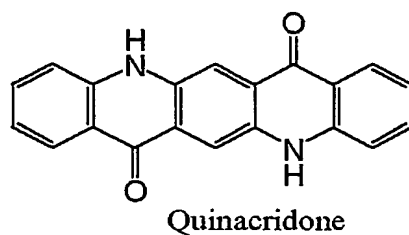
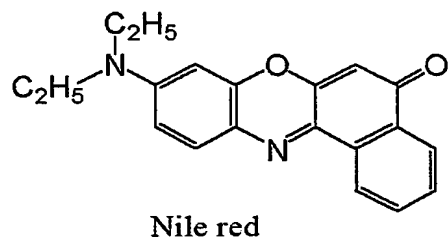
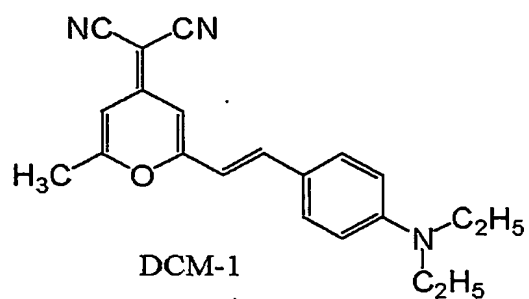
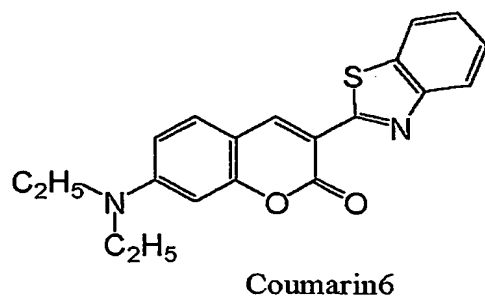


M : Al, Ga

## 【0083】

【化 23】

発光材料

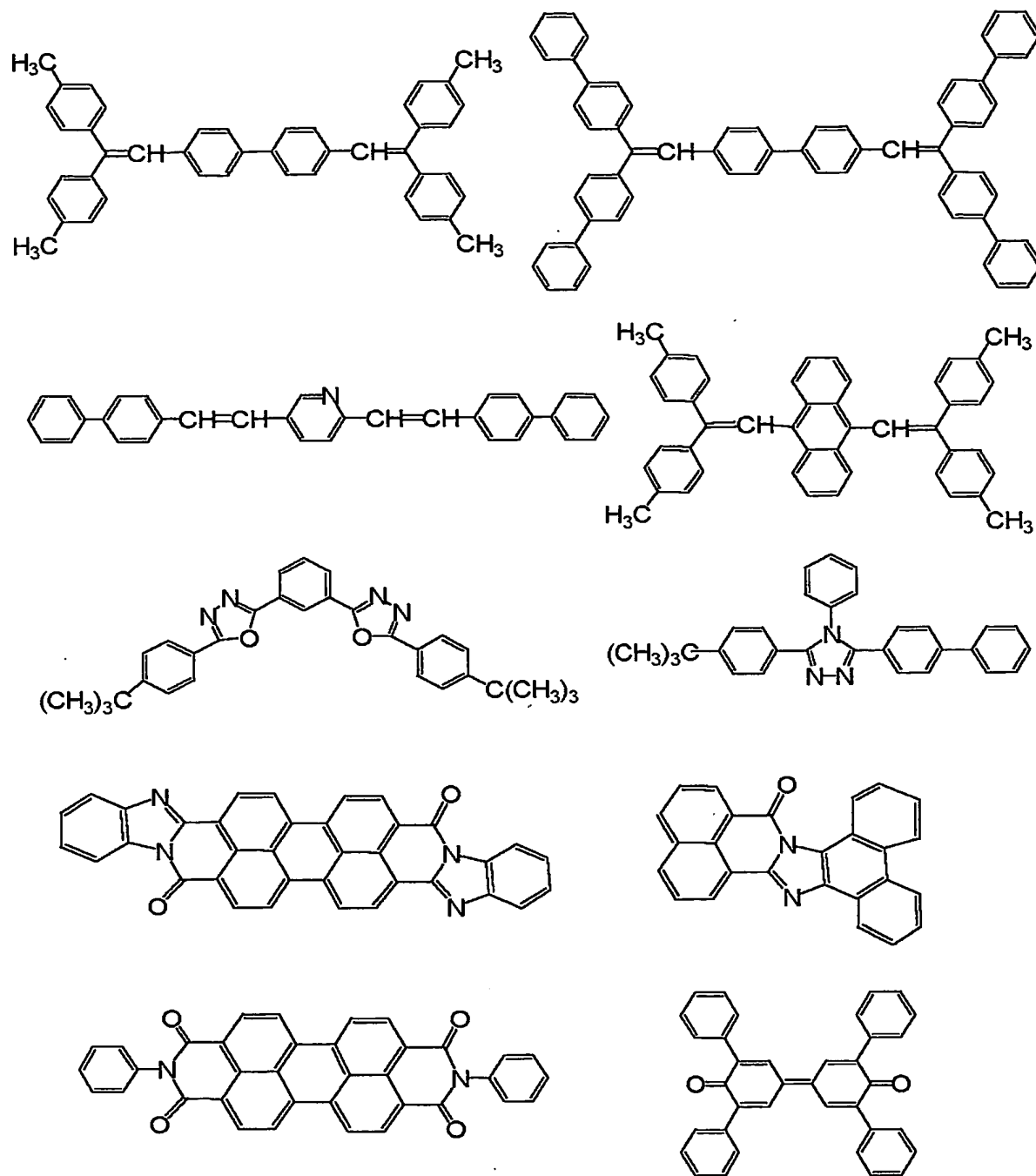


【0084】

5

【化 24】

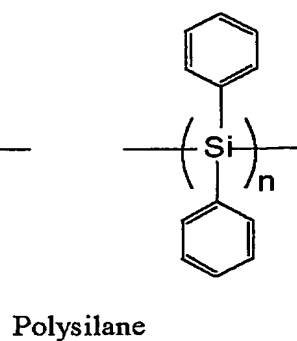
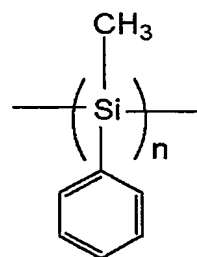
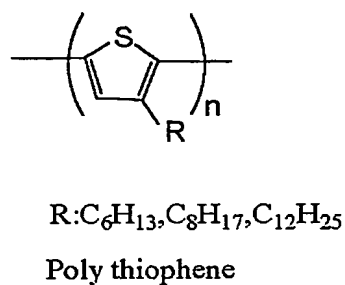
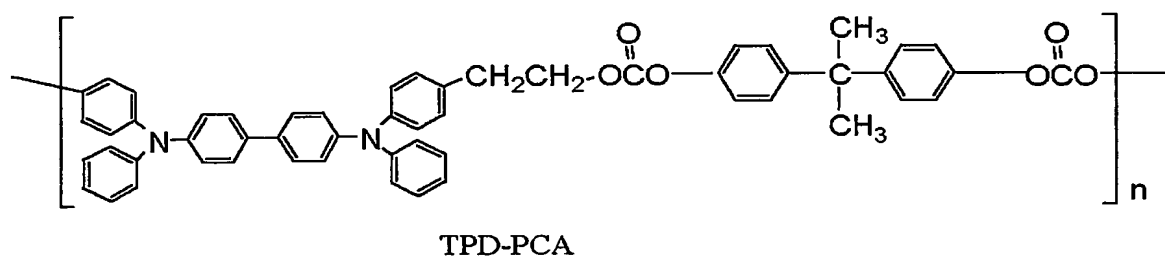
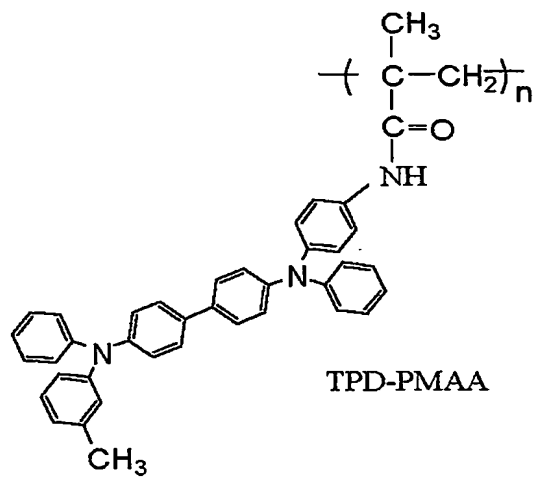
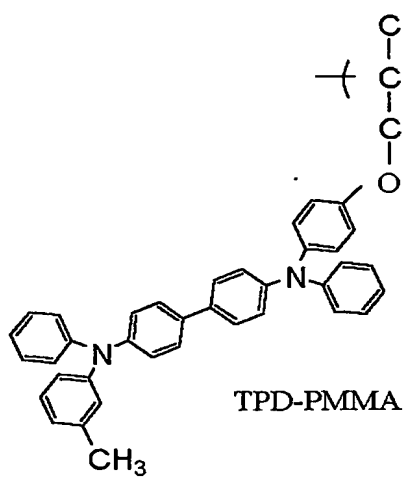
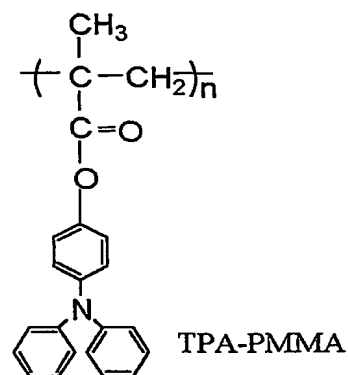
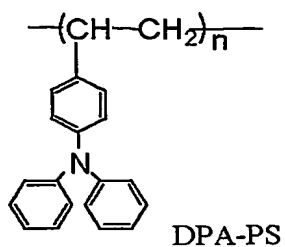
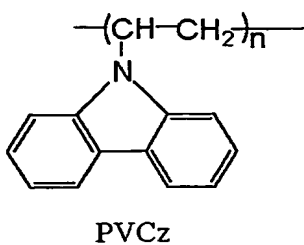
発光層マトリックス材料および電子輸送材料



【0085】

## 【化 25】

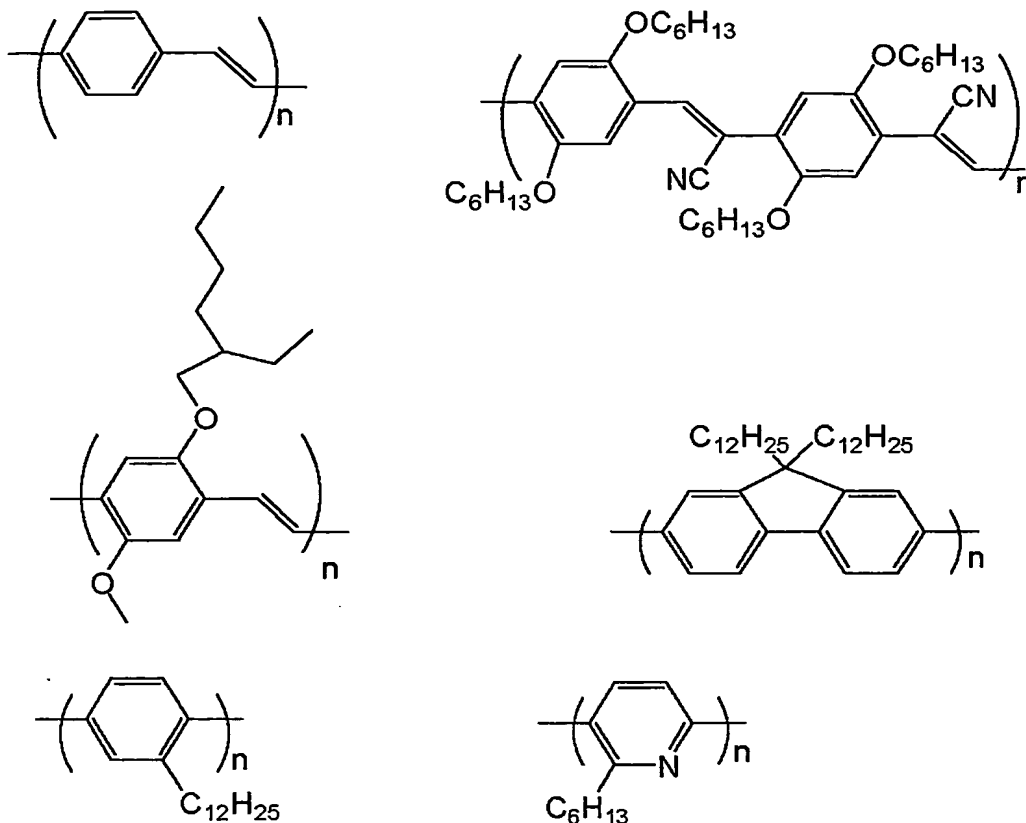
ポリマー系ホール輸送性材料



【0086】

## 【化26】

ポリマー系発光材料および電荷輸送性材料



## 【0087】

本発明の有機発光素子において、一般式 [I] または一般式 [II] で示される縮合多環化合物を含有する層および他の有機化合物を含有する層は、一般には真空蒸着法あるいは、適当な溶媒に溶解させて塗布法により薄膜を形成する。特に塗布法で成膜する場合は、適当な結着樹脂と組み合わせて膜を形成することもできる。

## 【0088】

上記結着樹脂としては、広範囲な結着性樹脂より選択でき、たとえばポリビニルカルバゾール樹脂、ポリカーボネート樹脂、ポリエステル樹脂、ポリアリレート樹脂、ポリスチレン樹脂、アクリル樹脂、メタクリル樹脂、ブチラール樹脂、ポリビニルアセタール樹脂、ジアリルフタレート樹脂、フェノール樹脂、エポキシ樹脂、シリコン樹脂、ポリスルホン樹脂、尿素樹脂等が挙げられるが、これらに限定されるものではない。また、これらは単独または共重合体ポリマーとして1種または2種以上混合してもよい。

## 【0089】

陽極材料としては、仕事関数ができるべく大きなものがよく、例えば、金、白金、ニッケル、パラジウム、コバルト、セレン、バナジウム等の金属単体あるいはこれらの合金、酸化錫、酸化亜鉛、酸化錫インジウム (ITO)、酸化亜鉛インジウム等の金属酸化物が使用できる。また、ポリアニリン、ポリピロール、ポリチオフェン、ポリフェニレンスルフィド等の導電性ポリマーも使用できる。これらの電極物質は単独で用いてもよく、複数併用することもできる。

## 【0090】

一方、陰極材料としては、仕事関数の小さなものがよく、リチウム、ナトリウム、カリウム、カルシウム、マグネシウム、アルミニウム、インジウム、銀、鉛、錫、クロム等の金属単体あるいは複数の合金として用いることができる。酸化錫インジウム (ITO) 等

の金属酸化物の利用も可能である。また、陰極は一層構成でもよく、多層構成をとることもできる。

#### 【0091】

本発明で用いる基板としては、特に限定するものではないが、金属製基板、セラミックス製基板等の不透明性基板、ガラス、石英、プラスチックシート等の透明性基板が用いられる。また、基板にカラーフィルター膜、蛍光色変換フィルター膜、誘電体反射膜などを用いて発色光をコントロールする事も可能である。

#### 【0092】

なお、作成した素子に対して、酸素や水分等との接触を防止する目的で保護層あるいは封止層を設けることもできる。保護層としては、ダイヤモンド薄膜、金属酸化物、金属窒化物等の無機材料膜、フッ素樹脂、ポリパラキシレン、ポリエチレン、シリコン樹脂、ポリスチレン樹脂等の高分子膜、さらには、光硬化性樹脂等が挙げられる。また、ガラス、気体不透過性フィルム、金属などをカバーし、適当な封止樹脂により素子自体をパッケージングすることもできる。

#### 【実施例】

#### 【0093】

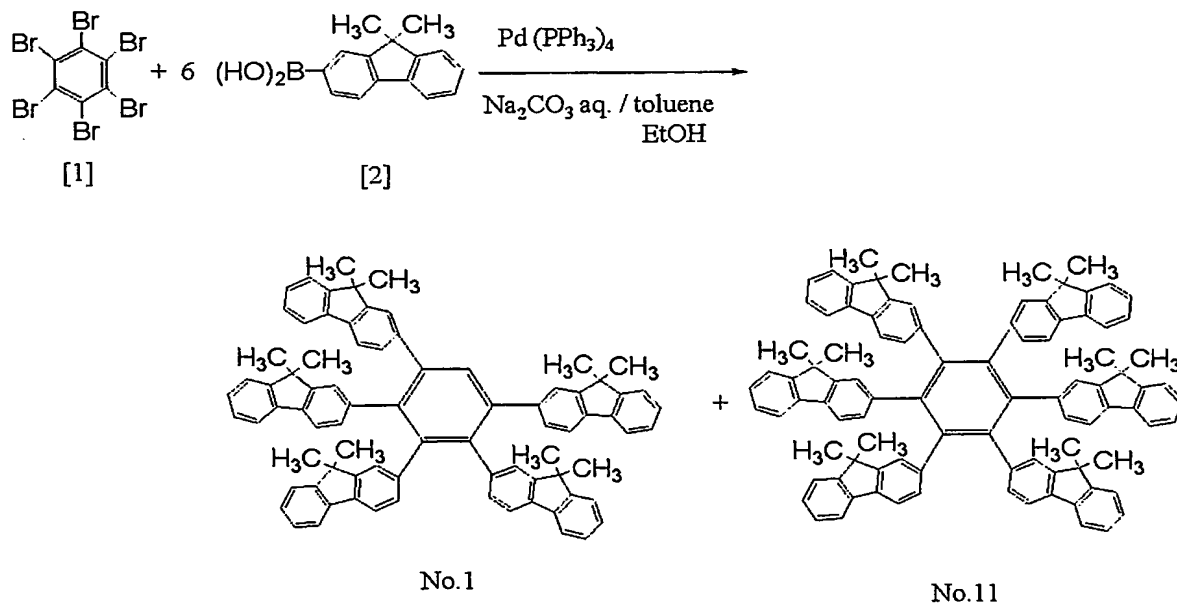
以下、実施例により本発明をさらに具体的に説明していくが、本発明はこれらに限定されるものではない。

#### 【0094】

<合成例1> [例示化合物No. 1およびNo. 11の合成]

#### 【0095】

#### 【化27】



#### 【0096】

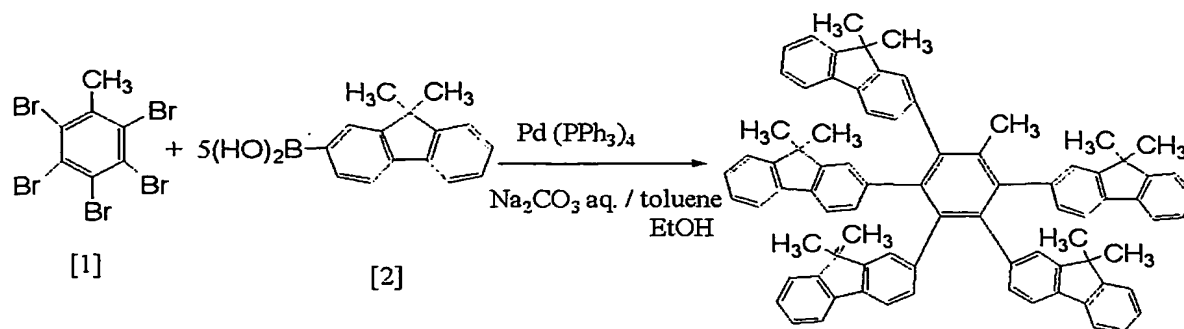
500ml三ツ口フラスコに、ヘキサプロモベンゼン [1] 1.4g (2.54mmol)、9,9-ジメチルフルオレン-2-ボロン酸 [2] 6.0g (25.4mmol)、トルエン160mlおよびエタノール80mlを入れ、窒素雰囲気中、室温で攪拌下、炭酸ナトリウム30g/水150mlの水溶液を滴下し、次いでテトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0) 0.9g (0.78mmol)を添加した。室温で30分攪拌した後、77度に昇温し20時間攪拌した。反応後、有機層をクロロホルムで抽出し無水硫酸ナトリウムで乾燥後、シリカゲルカラム(ヘキサン+トルエン混合展開溶媒)で精製し、例示化合物No. 1(白色結晶) 0.44g(収率17%)およびNo. 11(白色結晶) 1.3g(収率42%)を得た。

#### 【0097】

## &lt;合成例 2&gt; [例示化合物 No. 2 の合成]

【0098】

【化28】



No.2

【0099】

300 ml 三ツ口フラスコに、2, 3, 4, 5, 6-ペンタブロモトルエン [1] 0.5 g (1.03 mmol)、9, 9-ジメチルフルオレン-2-ボロン酸 [2] 2.5 g (10.3 mmol)、トルエン 100 ml およびエタノール 50 ml を入れ、窒素雰囲気中、室温で攪拌下、炭酸ナトリウム 10 g / 水 50 ml の水溶液を滴下し、次いでテトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム (0) 0.3 g (0.26 mmol) を添加した。室温で 30 分攪拌した後、77 度に昇温し 20 時間攪拌した。反応後、有機層をクロロホルムで抽出し無水硫酸ナトリウムで乾燥後、シリカゲルカラム(ヘキサン+トルエン混合展開溶媒)で精製し、例示化合物 No. 2 (白色結晶) 0.54 g (収率 55%) を得た。

【0100】

## &lt;実施例 1&gt;

図 2 に示す構造の素子を作成した。

【0101】

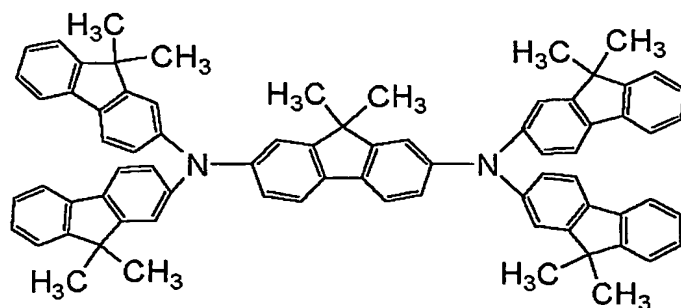
基板 1 としてのガラス基板上に、陽極 2 としての酸化錫インジウム (ITO) をスパッタ法にて 120 nm の膜厚で成膜したものを透明導電性支持基板として用いた。これをアセトン、イソプロピルアルコール (IPA) で順次超音波洗浄し、次いで IPA で煮沸洗浄後、乾燥した。さらに、UV / オゾン洗浄したものを透明導電性支持基板として使用した。

【0102】

透明導電性支持基板上に下記構造式で示される化合物のクロロホルム溶液をスピンコート法により 30 nm の膜厚で成膜しホール輸送層 5 を形成した。

【0103】

【化29】



【0104】

さらに例示化合物 No. 11 で示される縮合多環化合物を真空蒸着法により 50 nm の膜厚で成膜し、電子輸送層 6 を形成した。蒸着時の真空度は  $1.0 \times 10^{-4}$  Pa、成膜速



度は0.2~0.3 nm/secの条件で成膜した。

【0105】

次に、陰極4として、アルミニウムとリチウム（リチウム濃度1原子%）からなる蒸着材料を用いて、上記有機層の上に真空蒸着法により厚さ50 nmの金属層膜を形成し、さらに真空蒸着法により厚さ150 nmのアルミニウム層を形成した。蒸着時の真空度は $1.0 \times 10^{-4}$  Pa、成膜速度は1.0~1.2 nm/secの条件で成膜した。

【0106】

さらに、窒素雰囲気中で保護用ガラス板をかぶせ、アクリル樹脂系接着材で封止した。

【0107】

この様にして得られた素子に、ITO電極（陽極2）を正極、Al-Li電極（陰極4）を負極にして、10 Vの直流電圧を印加すると12.0 mA/cm<sup>2</sup>の電流密度で電流が素子に流れ、2800 cd/m<sup>2</sup>の輝度で青色の発光が観測された。

【0108】

さらに、電流密度を10.0 mA/cm<sup>2</sup>に保ち100時間電圧を印加したところ、初期輝度2200 cd/m<sup>2</sup>から100時間後2000 cd/m<sup>2</sup>と輝度劣化は小さかった。

【0109】

<実施例2~10>

例示化合物No. 11に代えて、表1に示す例示化合物を用いた他は実施例1と同様に素子を作成し、同様な評価を行った。結果を表1に示す。

【0110】

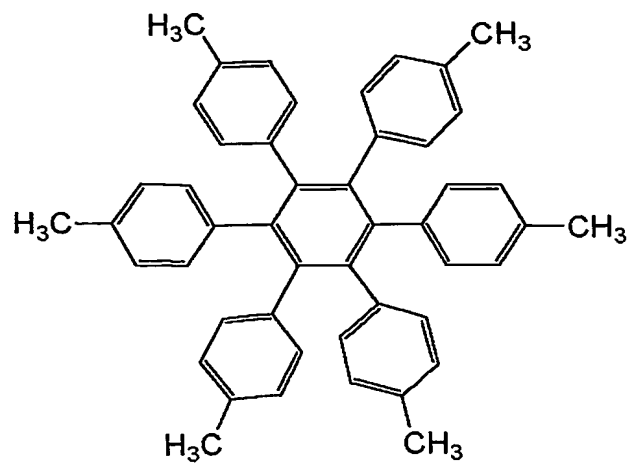
<比較例1~5>

例示化合物No. 11に代えて、下記構造式で示される化合物を用いた他は実施例1と同様に素子を作成し、同様な評価を行った。結果を表1に示す。

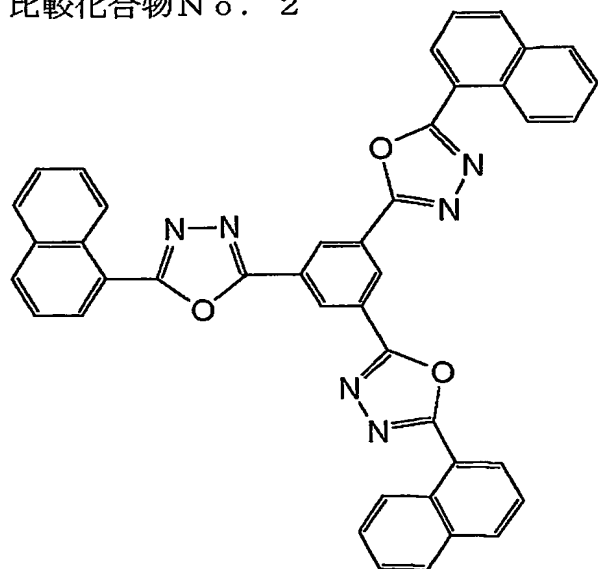
【0111】

【化30】

比較化合物No. 1



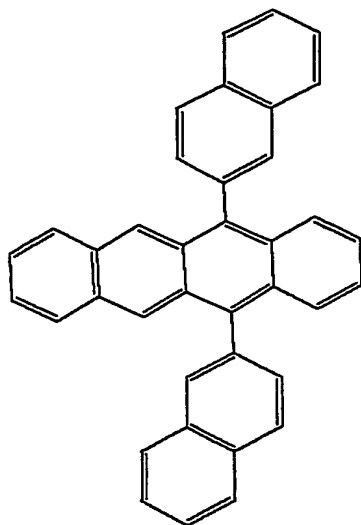
比較化合物No. 2



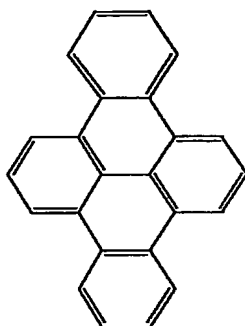
【0112】

【化 31】

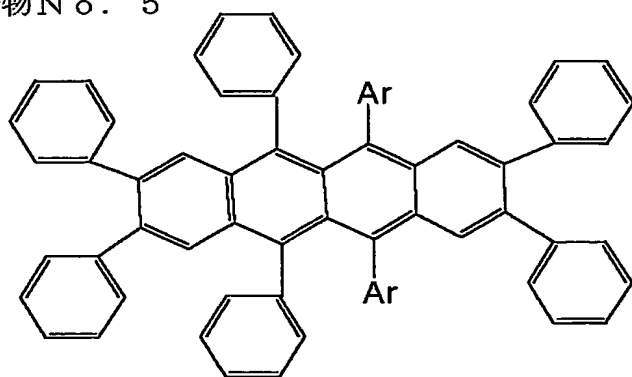
比較化合物 No. 3



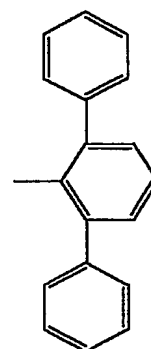
比較化合物 No. 4



比較化合物 No. 5



Ar:



【0113】

【表 1】

例 No.	例示化合物 No.	初期		耐久		
		印加電圧 (V)	輝度 (cd/m <sup>2</sup> )	電流密度 (mA/cm <sup>2</sup> )	初期輝度 (cd/m <sup>2</sup> )	100 時間後 輝度 (cd/m <sup>2</sup> )
実施例 1	11	10	2800	10.0	2200	2000
2	1	10	2600	10.0	1900	1600
3	3	10	3000	10.0	2400	2000
4	6	10	1900	10.0	1400	1100
5	8	10	1800	10.0	1500	1300
6	9	10	2000	10.0	1500	1200
7	12	10	2400	10.0	1900	1500
8	14	10	950	10.0	800	700
9	17	10	1700	10.0	1400	1300
10	21	10	2200	10.0	1900	1500
比較例 1	比較 1	10	150	10.0	140	発光せず
2	比較 2	10	170	10.0	150	発光せず
3	比較 3	10	300	10.0	250	30
4	比較 4	10	250	10.0	240	90
5	比較 5	10	450	10.0	420	150

【0114】

<実施例 11>

図 3 に示す構造の素子を作成した。

【0115】

実施例 1 と同様に、透明導電性支持基板上にホール輸送層 5 を形成した。

【0116】

さらに例示化合物 No. 1 で示される縮合多環化合物を真空蒸着法により 20 nm の膜厚で成膜し、発光層 3 を形成した。蒸着時の真空度は  $1.0 \times 10^{-4}$  Pa、成膜速度は 0.2 ~ 0.3 nm/sec の条件で成膜した。

【0117】

さらにアルミニウムトリスキノリノールを真空蒸着法により 40 nm の膜厚で成膜し、電子輸送層 6 を形成した。蒸着時の真空度は  $1.0 \times 10^{-4}$  Pa、成膜速度は 0.2 ~ 0.3 nm/sec の条件で成膜した。

【0118】

次に、実施例 1 と同様にして陰極 4 を形成した後に封止した。

【0119】

この様にして得られた素子に、ITO 電極（陽極 2）を正極、Al-Li 電極（陰極 4）を負極にして、8 V の直流電圧を印加すると  $14.0 \text{ mA/cm}^2$  の電流密度で電流が素子に流れ、 $5800 \text{ cd/m}^2$  の輝度で青色の発光が観測された。

【0120】

さらに、電流密度を  $10.0 \text{ mA/cm}^2$  に保ち 100 時間電圧を印加したところ、初期輝度  $4500 \text{ cd/m}^2$  から 100 時間後  $4200 \text{ cd/m}^2$  と輝度劣化は小さかった。

【0121】

<実施例 12 ~ 20>

例示化合物 No. 1 に代えて、表 2 に示す例示化合物を用いた他は実施例 11 と同様に素子を作成し、同様な評価を行った。結果を表 2 に示す。

【0122】

<比較例 6 ~ 10>

例示化合物 No. 1 に代えて、比較化合物 No. 1～5 を用いた他は実施例 11 と同様に素子を作成し、同様な評価を行った。結果を表 2 に示す。

【0123】

【表 2】

例 No.	例示化合物 No.	初期		耐久		
		印加電圧 (V)	輝度 (cd/m <sup>2</sup> )	電流密度 (mA/cm <sup>2</sup> )	初期輝度 (cd/m <sup>2</sup> )	100 時間後 輝度 (cd/m <sup>2</sup> )
実施例 11	1	8	5800	10.0	4500	4200
12	2	8	5300	10.0	4200	4000
13	4	8	2900	10.0	2200	2000
14	7	8	4200	10.0	3400	3200
15	10	8	3000	10.0	2400	2000
16	13	8	3100	10.0	2200	2000
17	15	8	3600	10.0	2800	2300
18	18	8	3700	10.0	2700	2500
19	20	8	2800	10.0	2400	2100
20	22	8	3200	10.0	2500	2200
比較例 6	比較 1	8	350	10.0	300	発光せず
7	比較 2	8	400	10.0	350	発光せず
8	比較 3	8	1000	10.0	850	100
9	比較 4	8	750	10.0	650	50
10	比較 5	8	1500	10.0	1100	350

【0124】

<実施例 21>

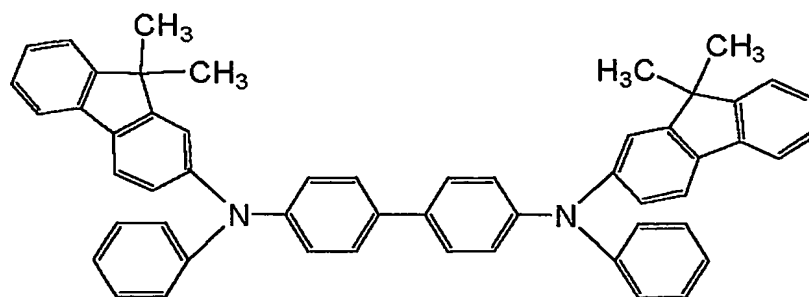
図 3 に示す構造の素子を作成した。

【0125】

実施例 1 と同様な透明導電性支持基板上に、下記構造式で示される化合物のクロロホルム溶液をスピンコート法により 20 nm の膜厚で成膜し、ホール輸送層 5 を形成した。

【0126】

【化 3 2】



【0127】

さらに例示化合物 No. 11 で示される縮合多環化合物および例示化合物 No. FL-6 で示されるフルオレン化合物（重量比 100 : 1）を真空蒸着法により 20 nm の膜厚で成膜し、発光層 3 を形成した。蒸着時の真空度は  $1.0 \times 10^{-4}$  Pa、成膜速度は 0.2 ~ 0.3 nm/sec の条件で成膜した。

【0128】

さらにアルミニウムトリスキノリノールを真空蒸着法により 40 nm の膜厚で成膜し、電子輸送層 6 を形成した。蒸着時の真空度は  $1.0 \times 10^{-4}$  Pa、成膜速度は 0.2 ~ 0

． 3 nm/sec の条件で成膜した。

【0129】

次に、実施例 1 と同様にして陰極 4 を形成した後に封止した。

【0130】

この様にして得られた素子に、ITO 電極（陽極 2）を正極、Al-Li 電極（陰極 4）を負極にして、8 V の直流電圧を印加すると 13.0 mA/cm<sup>2</sup> の電流密度で電流が素子に流れ、13000 cd/m<sup>2</sup> の輝度で青色の発光が観測された。

【0131】

さらに、電流密度を 10.0 mA/cm<sup>2</sup> に保ち 100 時間電圧を印加したところ、初期輝度 10000 cd/m<sup>2</sup> から 100 時間後 8900 cd/m<sup>2</sup> と輝度劣化は小さかった。

。

【0132】

<実施例 22～40>

例示フルオレン化合物 No. FL-6 に代えて、表 3 に示す例示フルオレン化合物を用いた他は実施例 21 と同様に素子を作成し、同様な評価を行った。結果を表 3 に示す。

【0133】

<比較例 11～15>

例示化合物 No. 11 に代えて、比較化合物 No. 1～5 を用いた他は実施例 21 と同様に素子を作成し、同様な評価を行った。結果を表 3 に示す。

【0134】

【表 3】

例 No.	例示化合物 No.	例示フルイ ン化合物 No.	初期		耐久		
			印加電圧 (V)	輝度 (cd/m <sup>2</sup> )	電流密度 (A/cm <sup>2</sup> )	初期輝度 (cd/m <sup>2</sup> )	100 時間後 輝度 (cd/m <sup>2</sup> )
実施例 21	11	FL-6	8	13000	10.0	10000	9000
22	11	FL-1	8	11000	10.0	8500	8000
23	11	FL-2	8	11000	10.0	8000	7000
24	11	FL-3	8	8500	10.0	7500	6500
25	11	FL-4	8	13000	10.0	9500	7500
26	11	FL-5	8	12000	10.0	9000	7000
27	11	FL-7	8	7000	10.0	6000	5500
28	11	FL-8	8	7500	10.0	6500	6000
29	11	FL-9	8	12000	10.0	10000	9000
30	11	FL-10	8	6500	10.0	6000	5500
31	11	FL-11	8	15000	10.0	12000	11000
32	11	FL-12	8	9000	10.0	8000	6500
33	11	FL-13	8	7000	10.0	6500	6000
34	11	FL-14	8	8000	10.0	6500	5500
35	11	FL-15	8	11000	10.0	9000	8000
36	11	FL-16	8	16000	10.0	13000	11000
37	11	FL-17	8	13000	10.0	11000	9500
38	11	FL-18	8	9500	10.0	8000	6500
39	11	FL-19	8	7500	10.0	6000	5000
40	11	FL-20	8	6500	10.0	6000	5000
比較例 11	比較 1	FL-6	8	2500	10.0	2000	300
12	比較 2	FL-6	8	2000	10.0	1500	発光せず
13	比較 3	FL-6	8	3000	10.0	2500	600
14	比較 4	FL-6	8	2500	10.0	2000	400
15	比較 5	FL-6	8	3500	10.0	3000	1000

【0135】

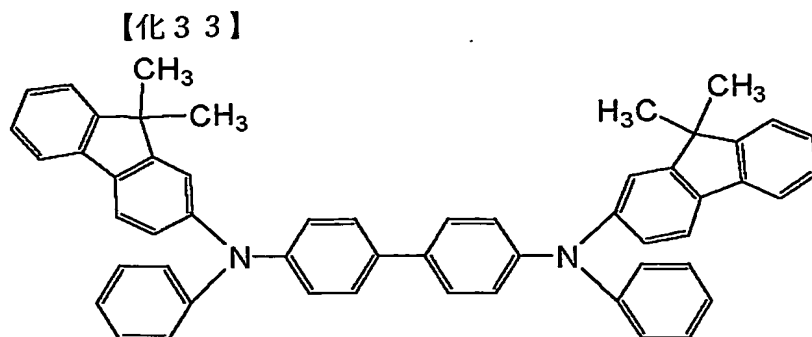
&lt;実施例 41&gt;

図 3 に示す構造の素子を作成した。

【0136】

実施例 1 と同様な透明導電性支持基板上に、下記構造式で示される化合物のクロロホルム溶液をスピンコート法により 20 nm の膜厚で成膜し、ホール輸送層 5 を形成した。

【0137】

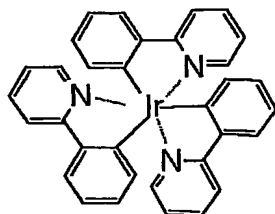


【0 1 3 8】

さらに例示化合物 No. 2 で示される縮合多環化合物および下記構造式で示される化合物（重量比 1 0 0 : 5）を真空蒸着法により 2 0 n m の膜厚で成膜し、発光層 3 を形成した。蒸着時の真空度は  $1.0 \times 10^{-4}$  P a、成膜速度は 0. 2 ~ 0. 3 n m / s e c の条件で成膜した。

【0 1 3 9】

【化 3 4】



【0 1 4 0】

さらにバソフェナントロリン（B P h e n）を真空蒸着法により 4 0 n m の膜厚で成膜し、電子輸送層 6 を形成した。蒸着時の真空度は  $1.0 \times 10^{-4}$  P a、成膜速度は 0. 2 ~ 0. 3 n m / s e c の条件で成膜した。

【0 1 4 1】

次に、実施例 1 と同様にして陰極 4 を形成した後に封止した。

【0 1 4 2】

この様にして得られた素子に、I T O 電極（陽極 2）を正極、A l - L i 電極（陰極 4）を負極にして、8 V の直流電圧を印加すると 9. 5 m A / c m<sup>2</sup> の電流密度で電流が素子に流れ、7 0 0 0 c d / m<sup>2</sup> の輝度で緑色の発光が観測された。

【0 1 4 3】

さらに、電流密度を 7. 0 m A / c m<sup>2</sup> に保ち 1 0 0 時間電圧を印加したところ、初期輝度 5 0 0 0 c d / m<sup>2</sup> から 1 0 0 時間後 4 5 0 0 c d / m<sup>2</sup> と輝度劣化は小さかった。

【0 1 4 4】

<実施例 4 2 ~ 5 0>

例示化合物 No. 2 に代えて、表 4 に示す例示化合物を用いた他は実施例 4 1 と同様に素子を作成し、同様な評価を行った。結果を表 4 に示す。

【0 1 4 5】

<比較例 1 6 ~ 2 0>

例示化合物 No. 2 に代えて、比較化合物 No. 1 ~ 5 を用いた他は実施例 4 1 と同様に素子を作成し、同様な評価を行った。結果を表 4 に示す。

【0 1 4 6】



【表 4】

例 No.	例示化合物 No.	初期		耐久		
		印加電圧 (V)	輝度 (cd/m <sup>2</sup> )	電流密度 (mA/cm <sup>2</sup> )	初期輝度 (cd/m <sup>2</sup> )	100 時間後 輝度 (cd/m <sup>2</sup> )
実施例 41	2	8	7000	7.0	5000	4500
42	3	8	6500	7.0	5000	4000
43	5	8	8000	7.0	6500	6000
44	6	8	7000	7.0	6000	5000
45	13	8	6000	7.0	5000	4500
46	15	8	8500	7.0	7500	6500
47	16	8	7000	7.0	6500	6000
48	19	8	4500	7.0	4000	3500
49	20	8	5000	7.0	4000	3000
50	22	8	6500	7.0	5500	4500
比較例 16	比較 1	8	900	7.0	800	100
17	比較 2	8	650	7.0	600	発光せず
18	比較 3	8	1500	7.0	1000	300
19	比較 4	8	1000	7.0	850	100
20	比較 5	8	2000	7.0	1500	550

【0147】

&lt;実施例 51&gt;

図 1 に示す構造の素子を作成した。

【0148】

実施例 1 と同様な透明導電性支持基板上に、例示化合物 No. 1 で示される縮合多環化合物を 0.050 g およびポリ-N-ビニルカルbazol (重量平均分子量=63,000) 1.00 g をクロロホルム 80 ml に溶解した溶液をスピンコート法 (回転数=2000 rpm) により 120 nm の膜厚に成膜し有機層 (発光層 3) を形成した。

【0149】

次に、実施例 1 と同様にして陰極 4 を形成した後に封止した。

【0150】

この様にして得られた素子に、ITO 電極 (陽極 2) を正極、Al-Li 電極 (陰極 4) を負極にして、10 V の直流電圧を印加すると 7.7 mA/cm<sup>2</sup> の電流密度で電流が素子に流れ、1400 cd/m<sup>2</sup> の輝度で青色の発光が観測された。

【0151】

さらに、窒素雰囲気下で電流密度を 5.0 mA/cm<sup>2</sup> に保ち 100 時間電圧を印加したところ、初期輝度 950 cd/m<sup>2</sup> から 100 時間後 900 cd/m<sup>2</sup> と輝度劣化は小さかった。

【0152】

&lt;実施例 52~55&gt;

例示化合物 No. 1 に代えて、表 5 に示す例示化合物を用いた他は実施例 51 と同様に素子を作成し、同様な評価を行った。結果を表 5 に示す。

【0153】

&lt;比較例 21~25&gt;

例示化合物 No. 1 に代えて、比較化合物 No. 1~5 を用いた他は実施例 51 と同様に素子を作成し、同様な評価を行った。結果を表 5 に示す。

【0154】

【表 5】

例 No.	例示化合物 No.	初期		耐久		
		印加電圧 (V)	輝度 (cd/m <sup>2</sup> )	電流密度 (mA/cm <sup>2</sup> )	初期輝度 (cd/m <sup>2</sup> )	100 時間後 輝度 (cd/m <sup>2</sup> )
実施例 51	1	10	1400	5.0	950	900
52	2	10	1200	5.0	900	800
53	11	10	1500	5.0	1200	1100
54	17	10	1400	5.0	1000	950
55	19	10	1300	5.0	1000	850
比較例 21	比較 1	10	250	5.0	200	発光せず
22	比較 2	10	150	5.0	100	発光せず
23	比較 3	10	350	5.0	300	発光せず
24	比較 4	10	300	5.0	250	発光せず
25	比較 5	10	550	5.0	450	100

## 【図面の簡単な説明】

【0155】

【図 1】本発明における有機発光素子の一例を示す断面図である。

【図 2】本発明における有機発光素子の他の例を示す断面図である。

【図 3】本発明における有機発光素子の他の例を示す断面図である。

【図 4】本発明における有機発光素子の他の例を示す断面図である。

【図 5】本発明における有機発光素子の他の例を示す断面図である。

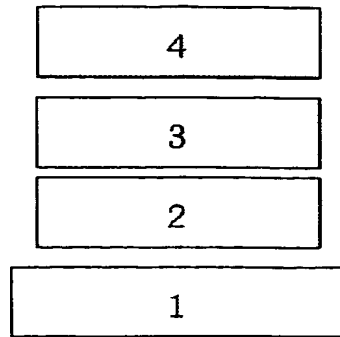
【図 6】本発明における有機発光素子の他の例を示す断面図である。

## 【符号の説明】

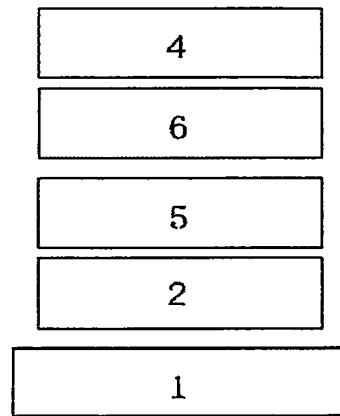
【0156】

- 1 基板
- 2 陽極
- 3 発光層
- 4 陰極
- 5 ホール輸送層
- 6 電子輸送層
- 7 ホール注入層
- 8 ホール／エキシトンブロッキング層

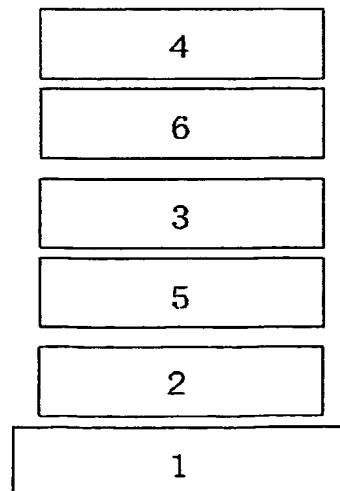
【書類名】 図面  
【図 1】



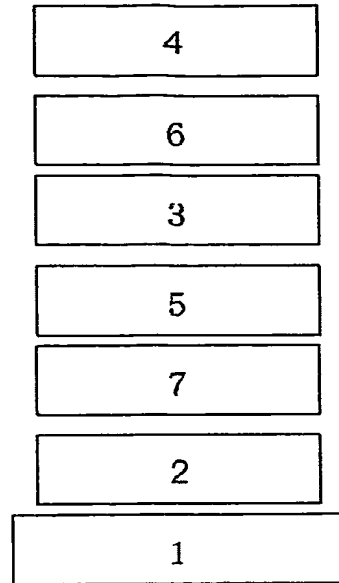
【図 2】



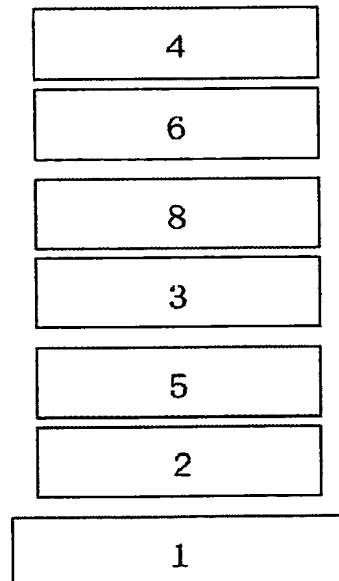
【図 3】



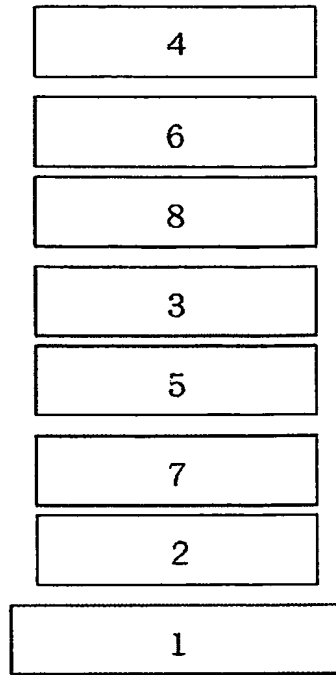
【図 4】



【図 5】



【図 6】



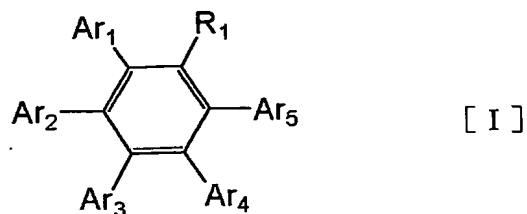
【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 新規な縮合多環化合物を提供し、この縮合多環化合物を用いて、極めて高効率で、高輝度な光出力を有し、極めて耐久性のある有機発光素子を提供する。

【解決手段】 下記一般式 [I] で示される縮合多環化合物。

【化 1】



(式中、R<sub>1</sub>は、水素原子、置換あるいは無置換のアルキル基、置換あるいは無置換のアラルキル基、置換あるいは無置換のアリール基、置換あるいは無置換の複素環基、置換アミノ基、シアノ基またはハロゲン原子を表わす。Ar<sub>1</sub>～Ar<sub>5</sub>は、置換あるいは無置換の縮合多環芳香族基または置換あるいは無置換の縮合多環複素環基を表わし、同じであっても異なっているいてもよい。)

【選択図】 なし

## 認定・付加情報

特許出願の番号	特願 2003-291191
受付番号	50301328515
書類名	特許願
担当官	第四担当上席 0093
作成日	平成 15 年 8 月 14 日

## &lt;認定情報・付加情報&gt;

## 【特許出願人】

【識別番号】	000001007
【住所又は居所】	東京都大田区下丸子 3 丁目 30 番 2 号
【氏名又は名称】	キャノン株式会社

## 【代理人】

申請人

【識別番号】	100096828
【住所又は居所】	東京都千代田区有楽町 1 丁目 4 番 1 号 三信ビル 229 号室
【氏名又は名称】	渡辺 敬介

## 【選任した代理人】

【識別番号】	100110870
【住所又は居所】	東京都千代田区有楽町 1 丁目 4 番 1 号 三信ビル 229 号室
【氏名又は名称】	山口 芳広

特願 2 0 0 3 - 2 9 1 1 9 1

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[ 0 0 0 0 0 1 0 0 7 ]

1. 変更年月日

1 9 9 0 年 8 月 3 0 日

[変更理由]

新規登録

住 所

東京都大田区下丸子 3 丁目 3 0 番 2 号

氏 名

キャノン株式会社